

# THÈSE

présentée par

**Louis GRENET**

pour obtenir le titre de

**DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ de GRENOBLE**  
(Arrêté ministériel du 7 Août 2006)

Spécialité :  
Physique de la Matière Condensée et du Rayonnement

## **Injection de spins dans les semi-conducteurs**

Date de soutenance : 19 Mai 2010

### **Composition du jury**

Monsieur	Joël CIBERT	Président
Monsieur	Jean-Marie GEORGE	Rapporteur
Monsieur	Xavier MARIE	Rapporteur
Monsieur	Vinh LE THANH	Examineur
Monsieur	Patrick WARIN	Examineur
Monsieur	Yves SAMSON	Examineur

---

Thèse préparée au sein du  
CEA – Institut NANoscience et Cryogénie  
Service de Physique des Matériaux et Microstructures  
(CEA-GRENOBLE ET UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER)  
LABORATOIRE NANOSTRUCTURE ET MAGNÉTISME



*Propre !!!*

## Remerciements

Il est temps pour moi de conclure ce manuscrit et ainsi d'écrire les premiers mots qui seront parcourus à la lecture. L'heure de remercier ceux qui, de près ou de loin, ont contribué à rendre ces quatre années enrichissantes et agréables.

Inversant la chronologie je souhaite tout d'abord vivement remercier les membres de mon jury : Monsieur Joël Cibert pour l'avoir présidé, Messieurs Jean-Marie George et Xavier Marie pour avoir accepté le rôle de rapporteur, Monsieur Vinh le Than pour y avoir pris part. Je leur suis très reconnaissant de l'intérêt porté à mon travail et des questions pertinentes m'ayant permis d'avancer dans la compréhension de cette étude.

Je remercie tout particulièrement Yves Samson pour avoir dirigé ces travaux, pour l'attention qu'il y a portée ainsi que pour l'autonomie qu'il m'a accordée dans mes recherches. Un immense merci à Patrick pour avoir encadré ce travail, relu maintes et maintes fois ce manuscrit, aidé chaque fois que je le sollicitais. Et surtout pour avoir été un chef particulièrement agréable ! Enfin merci Matthieu : spécialiste en tout dans un laboratoire et qui heureusement n'est pas capable de dire non quand on vient lui demander un service. Son temps est précieux, mais il l'offre avec générosité et efficacité. Encore merci pour ton aide immense, pour avoir su montrer le niveau d'exigence nécessaire à la recherche et pour ta gentillesse. Merci à vous deux également pour ce sujet : avec une telle pub, ça devait être une belle thèse !

Je suis également très reconnaissant envers toutes les personnes avec qui j'ai pu travailler, collaborer ou à qui j'ai pu demander de nombreux services : que ce soit en salle blanche, pour apprendre l'optique ou pour la microscopie, pour les mesures de Rayons X ou pour la croissance d'échantillons, pour les mesures SQUID ou pour la conception de pièces dans les différents ateliers... En espérant n'oublier personne, merci donc à : Christophe, Stéphanie, Pascale, Joël, Vincent, Pierre, Alain, Maëlla, Jean, Olivier, Frédéric, Helge, Lucien, Ariel, Jean-Christophe, Yann, Cyrille, Damien, Jean-François, Eric, Stéphane, Bernard, Yohanna.

Je n'aurais pas pu rester quatre ans au laboratoire si l'accueil n'y avait été aussi chaleureux, les pauses cafés aussi enrichissantes et l'attention portée à chacun aussi forte – dix minutes de retard et se voir demander si *t'étais à Skinaps* ? Merci à vous pour l'aide dans toutes les manip, pour les repas de labo qui font évacuer le bâtiment ou pour les discussions sans fin à H2. Ou simplement pour donner l'envie d'aller au labo le matin. Un immense merci à tous donc, c'est à dire Georgi, la vraie chef, Matthieu, Ariel, Patrick, Damien, Cyrille, Robert, Laurent, Lucien, Alain, Jean-Philippe, Jean-Christophe, Stéphane, Abi, Piotr et Daï. Sans oublier les nouveaux : Etienne et Thimothée, ni les anciens, Pierre, Thu-Nhi, Mickaël et Céline.



Je tiens à saluer ceux que j'ai eu l'occasion de croiser en diverses occasions, en passant d'un labo à l'autre. Merci donc à Claire, Vincent, Hanako – merci et bravo pour les Makis –, Myriam, Olivier, Aurélien, Clément, Gabriel, Raoul, Claire, Fanny et les autres pour les bons moments passés ici ou là.

Il est plus délicat de citer les amis plus anciens. L'union des potes est sacrée : en suivant l'ordre chronologique et le fil de mes pensées, j'espère n'en froisser aucun. Je commence donc par Benji et Jean, suivis de Manu. J'ajoute Guillaume et Lisa très rapidement derrière ainsi que Constance, Delphine, Caro et Cyril puis en invités surprise Perrine, Chloé et – à compléter rapidement – pour remercier très chaleureusement les vieux de la vieille, les amis qui sont là depuis un sacré bout de temps maintenant ! En restant dans les arrivées récentes, j'en profite pour faire un gros bisou à ma première filleule, Clarisse ainsi qu'à son papa, sa maman et sa sœur. Mais bien entendu, premiers arrivés, premiers servis, merci à Isabelle et à ses hommes !

Si au fil du temps, ceux-ci sont restés, d'autres sont arrivés et ont rendu bien des services et ces dernières années très agréables. Un grand merci, dans le désordre et pour tout à Périne – trois semaines dans la CdN sans se plaindre ! –, Nico et Cœur, Julien, Manu, Stéphanie, Jean-Baptiste, Pauline, Maud, Lionel, Claire, Morgan, Clément, Jeannie, Xavier, Jules, Hélène, Olive, Delphine, Garance, Rémi, Claire, Lise, Cécile, Florent, Romain – et ses chevaux –, Laurence, Alexia et Fabien, Sébastien, Julien et Marie, Daphné, Jo, Zabeth et tous les cousins. Je dois m'arrêter pour tenir en deux pages, mais je n'oublie évidemment pas les autres.

J'ai passé une petite partie de mon temps libre à me promener en montagne, je tiens donc à remercier tous ceux, nombreux, à qui je porte beaucoup d'affection et fréquemment la corde. En commençant évidemment par les *Encoulés* : Jean-Baptiste, Manu et Manu. Mais sans oublier Guillaume, Bruno, Nicolas, Séb le consang', Lionel, Stéphanie – doubles remerciements, mais une fois chez les Gre-lous –, Amanda, Jib, Claire, David, Maud – et pourtant, j'avais insité pour changer ENO F12... –, Jules, Nico et son masque, François, Pedro, Jeroen, Manu, Lio, Jo, Olivier, Shama, Bernard, Morgan, Thomas, Jeannie, Bertrand. . . puis tous ceux rencontrés dans les Ecrins d'un refuge ou d'une belle pente de neige. Si la montagne permet d'occuper agréablement le temps dévolu aux manips, elle peut parfois être moins marrante. Et un an ou un mois avant la soutenance, c'était pas le bon moment. Mais je crois que ça ne l'est jamais. François et Nico, vous faites chier . . . j'espère juste que vous continuez à ne pas abîmer la neige. En tout cas ici on essaye de s'appliquer, en pensant fort à vous !

Et enfin, les derniers mots iront à ma famille, papa, maman, mes frères, leurs chéries et le petit dernier qui ont toujours maintenu qu'il n'y avait pas que le boulot dans la vie ! Merci pour tout !!!

Sur ce, encore merci et je n'ai plus qu'à souhaiter une bonne lecture à ceux qui continuent. . . ce texte donne-t-il la sensation que la chute est sacrée ?



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>I Etat de l'art</b>	<b>5</b>
1 Travaux pionniers sur l'injection de spin. . . . .	6
1.1 Invention du transport polarisé en spin . . . . .	6
1.2 Premiers essais . . . . .	7
1.3 Points décisifs : l'injection à travers une barrière tunnel . . . . .	8
2 Détection électrique . . . . .	9
2.1 Détection électrique : problèmes théoriques . . . . .	10
2.2 Injection optique et détection électrique . . . . .	10
2.3 Injection et détection électrique. . . . .	12
2.3.1 Mesures non locales . . . . .	12
2.3.2 Mesures locales. . . . .	13
3 Injection électrique et détection optique . . . . .	16
3.1 Electrode non métallique . . . . .	17
3.2 Electrode métallique à aimantation planaire . . . . .	18
3.2.1 Injection dans les semi-conducteurs à gap direct. . . . .	18
3.2.2 Injection dans le silicium. . . . .	19
3.3 Injection en rémanence : électrode à aimantation perpendiculaire . . . .	20
<b>II Techniques expérimentales</b>	<b>23</b>
1 Techniques de croissance. . . . .	24
1.1 Epitaxie par Jets Moléculaires : EJM . . . . .	24
1.1.1 Généralités . . . . .	24
1.1.2 Bâti de dépôts métaux et oxyde . . . . .	25
1.1.3 Bâti de dépôts semi-conducteurs . . . . .	27
1.2 Pulvérisation cathodique . . . . .	29
1.2.1 Principe du dépôt . . . . .	29
1.2.2 Description du bâti . . . . .	29
1.3 Dépôt Chimique en phase Vapeur. . . . .	30

2 Mesures magnétiques. . . . .	30
2.1 Mesures par effet Kerr . . . . .	30
2.1.1 Principe physique. . . . .	31
2.1.2 Dispositif expérimental. . . . .	32
2.2 Magnétomètre à Squid . . . . .	33
2.2.1 Principe physique. . . . .	33
2.2.2 Domaines d'application . . . . .	33
2.3 Magnétomètre à Echantillon Vibrant . . . . .	34
2.4 Microscope à force atomique – Microscope à force magnétique . . . . .	34
2.4.1 Microscopie à Force Atomique. . . . .	34
2.4.2 Microscopie à Force Magnétique. . . . .	35
3 Caractérisation optique. . . . .	37
3.1 Photoluminescence . . . . .	37
3.2 ElectroLuminescence : EL . . . . .	38
3.2.1 Banc de Mesure. . . . .	38
3.2.2 Optique géométrique . . . . .	40
<b>III L'injecteur</b>	<b>43</b>
1 Obtention d'une source de courant polarisé . . . . .	44
1.1 Orientation de l'aimantation dans les couches minces magnétiques . . . . .	44
1.1.1 Direction d'aimantation : généralités. . . . .	44
1.1.2 L'énergie magnétostatique . . . . .	45
1.1.3 Anisotropie magnétocristalline : le cas du FePt . . . . .	46
1.1.4 L'énergie d'interface : les multicouches CoPt . . . . .	47
1.1.5 L'hybridation des orbitales d'interface . . . . .	49
1.2 Polarisation du courant et transport tunnel . . . . .	50
1.2.1 Polarisation du courant dans un métal ferromagnétique . . . . .	50
1.2.2 Jonctions tunnel magnétiques . . . . .	52
1.3 Injection à travers une barrière tunnel. . . . .	58
1.3.1 Explication physique . . . . .	59
1.3.2 Application aux cas <i>FePt/MgO/GaAs</i> et <i>CoPt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Si</i> . . . . .	60
2 FePt-MgO pour l'injection dans le GaAs . . . . .	66
2.1 Croissance par Epitaxie par Jets Moléculaires . . . . .	66
2.1.1 Structure cristallographique . . . . .	66
2.1.2 Epitaxie . . . . .	68
2.1.3 Procédé expérimental. . . . .	70
2.2 Propriétés d'injection . . . . .	75
2.2.1 Propriétés magnétiques de la couche de fer-platine . . . . .	75
2.2.2 Filtrage en spin de l'empilement . . . . .	80
3 CoPt-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> pour l'injection dans le silicium . . . . .	84
3.1 Croissance par Pulvérisation Cathodique . . . . .	85
3.1.1 Dépôt des injecteurs . . . . .	85
3.1.2 Mise en forme des échantillons. . . . .	88
3.1.3 Caractérisations structurales . . . . .	91
3.2 Propriétés d'injection . . . . .	97
3.2.1 Propriétés magnétiques. . . . .	97

3.2.2	Transport . . . . .	103
3.2.3	Polarisation de l'empilement . . . . .	108
3.3	Autres injecteurs testés . . . . .	109
3.3.1	Multicouches cobalt platine . . . . .	109
3.3.2	Couches à aimantation planaire redressée . . . . .	109
4	Conclusion . . . . .	111
<b>IV</b>	<b>Le détecteur</b>	<b>113</b>
1	Transport polarisé en spin dans les semi-conducteurs . . . . .	114
1.1	Le couplage spin-orbite . . . . .	114
1.2	Mécanismes de dépolarisation du courant . . . . .	116
1.2.1	Les différents mécanismes . . . . .	116
1.2.2	Effets de ces mécanismes. . . . .	120
1.3	Détection optique du courant polarisé . . . . .	124
1.3.1	Les spin-LEDs . . . . .	124
1.3.2	Autres moyens de détection . . . . .	130
1.4	Manipulation d'un courant polarisé. . . . .	130
1.4.1	Manipulation de spins par un champ magnétique . . . . .	130
1.4.2	Manipulation de spins par un champ électrique . . . . .	132
2	Injection de spins dans le GaAs . . . . .	133
2.1	Le GaAs. . . . .	134
2.1.1	Structure cristallographique . . . . .	134
2.1.2	Croissance du GaAs par Epitaxie par Jets Moléculaires . . . . .	135
2.2	Etude pour l'injection de spin. . . . .	140
2.2.1	Détecteur envisagé . . . . .	140
2.2.2	Propriétés optiques . . . . .	140
2.3	Conclusion sur l'injection dans le GaAs . . . . .	142
3	Injection et détection optique de spins dans le silicium . . . . .	142
3.1	Généralités sur les alliages Si/SiGe . . . . .	142
3.1.1	Intérêt de ces alliages. . . . .	143
3.1.2	Structure cristallographique . . . . .	143
3.1.3	Structure de bandes. . . . .	144
3.2	Structures à base de silicium . . . . .	146
3.2.1	Croissance . . . . .	146
3.2.2	Les différentes structures utilisées . . . . .	148
3.2.3	Caractérisation des différentes structures utilisées. . . . .	150
3.3	Détection et polarisation du courant injecté. . . . .	155
3.3.1	Mesures d'électroluminescence . . . . .	155
3.3.2	Mesures sur les autres structures . . . . .	161
3.3.3	Reproductibilité des mesures. . . . .	162
4	Conclusion . . . . .	163
	<b>Conclusion</b>	<b>165</b>



# Introduction

Le spin de l'atome d'argent a été mis en évidence pour la première fois en février 1922 par Stern et Gerlach [Gerlach, 1922a] [Gerlach, 1922b]. Le spin de l'électron a été introduit par Pauli en 1925 [Pauli, 1925] comme *eine klassisch nicht beschreibbare Art von Zweideutigkeit* – une sorte de dualité non descriptible par la théorie classique – pour expliquer l'effet Zeeman anormal. Cette découverte n'intervient que peu de temps après celle de l'électron, identifié expérimentalement seulement en 1897 par Thomson [Thomson, 1897] même si son invention par Laming date de 1838 [Laming, 1838]. Ces découvertes qui ont révolutionné la physique du vingtième siècle n'interviennent que très tardivement après les premières intuitions atomistes de la matière par Démocrite pendant l'antiquité :  $\Delta$  οκει δ αυτω ταδε αρχας ειναι τωνολων ατομους και κενον, τα δ αλλα παντα νενομισθαι δ οξαζεσθαι – [Démocrite] *admettait pour principes de l'univers les atomes et le vide, rejetant tout le reste comme fondé sur des conjectures* [Laërce, 1761].

Le spin de l'électron a d'abord été interprété par Uhlenbeck et Goudsmit comme un moment cinétique intrinsèque en 1925 [Uhlenbeck, 1925], mais cette théorie a été réfutée par Kronig [Kronig, 1926] : cela nécessitait une vitesse de rotation à l'équateur de la particule supérieure à la vitesse de la lumière. Le spin décrit par Pauli a été introduit comme postulat supplémentaire à la mécanique quantique non relativiste. Il apparaît de manière « naturelle » dans *l'équation de Dirac* formulée en 1928 par Paul Dirac [Dirac, 1928] pour rendre compatible l'équation de Schrödinger avec la relativité restreinte. C'est enfin en 1939 dans la théorie quantique des champs que le spin revêt son caractère le plus fondamental : l'analyse du groupe de Poincaré effectuée par Wigner [Wigner, 1939] montre que les deux paramètres importants pour classer une particule sont la masse et le spin.

L'exploitation du magnétisme et donc du spin dans l'industrie est antérieure à l'invention de ce dernier puisque Poulsen invente le *Télégraphone*, premier enregistreur magnétique, en 1898 [Poulsen, 1898]. Si l'utilisation de la magnétoélectronique est également déjà une réalité, avec par exemple l'introduction dès 1999 chez IBM de têtes de lecture fonctionnant sur le principe de la magnétorésistance, le degré de liberté qu'apporte le spin de l'électron n'a pas encore été exploité en

électronique traditionnelle. Or si la miniaturisation des composants utilisés en électronique et particulièrement la réduction de la taille des transistors a pu suivre une évolution exponentielle en étant divisée par deux tous les deux ans depuis 1975<sup>1</sup>, les limites de tailles imposées par la mécanique quantique devraient être atteintes aux alentours de 2015. Dans cette recherche de la miniaturisation des transistors, l'élément de base servant à véhiculer l'information est la charge de l'électron. Il existe donc seulement deux états possibles pour coder l'information : soit le transistor est passant, la charge est présente et le bit vaut 1, soit la charge n'est pas présente et le bit vaut 0.

Une alternative théorique pour contourner cette frontière quantique sur la réduction de la taille des composants est de changer le vecteur de l'information, à savoir remplacer la charge de l'électron par son spin. Cette ouverture vers *l'informatique quantique* avec une unité d'information quantique appelée *qubit* portée par le spin de l'électron ne nécessite plus de course à la miniaturisation puisque le qubit n'est plus nécessairement soit dans l'état 0, soit dans l'état 1 comme le bit traditionnel mais dans une combinaison linéaire de ces deux états. La puissance d'un ordinateur quantique est une fonction exponentielle du nombre de qubits, ce qui offrirait théoriquement des capacités de calcul rendant obsolète la course à l'augmentation de la densité des transistors.

La proposition, pour l'instant théorique, de l'informatique quantique nécessite de trouver des matériaux et des moyens pour intégrer le spin de l'électron en électronique et concevoir un dispositif pour la *spintronique*<sup>2</sup>. La première proposition pour un transistor fonctionnant grâce au spin de l'électron a été formulée en 1990 par Datta et Das [Datta, 1990]. Cette proposition théorique a motivé la communauté à s'intéresser à l'injection et à la détection de spins dans les matériaux semi-conducteurs.

Ce travail de thèse s'inscrit dans cette dynamique. Pour réaliser le transistor à spin, il est nécessaire de savoir injecter des spins dans un canal semi-conducteur. Pour faire cela, il existe plusieurs possibilités parmi lesquelles utiliser une électrode ferromagnétique. Mon activité au laboratoire Nanostructure et Magnétisme a consisté à étudier l'injection de courant polarisé en spin depuis une électrode ferromagnétique dans un matériau semi-conducteur. Pratiquement il s'agissait de développer les croissances des matériaux magnétiques et de les caractériser, puis d'étudier l'injection depuis ces électrodes en utilisant des moyens optiques pour détecter la polarisation du courant injecté dans le matériau semi-conducteur.

Cette étude s'est déroulée sur pratiquement quatre ans en comptant le stage de Master 2 effectué sur le même thème. Initialement, le sujet était d'étudier l'injection et la détection optique de spins dans l'arséniure de gallium depuis une

---

1. Cette évolution énoncée par Gordon Moore est une extrapolation empirique portant le nom de *Loi de Moore*.

2. Ce terme, acronyme de *spin transport electronics* a été introduit pour la première fois en 1994 par Wolf *et al.* dans un programme de la *Defense Advanced Research Projects Agency* [Wolf, 2003].



électrode ferromagnétique à aimantation perpendiculaire épitaxiée sur le matériau semi-conducteur. Après avoir développé cette croissance, nous nous sommes aperçus de l'impossibilité d'utiliser les structures semi-conductrices pour détecter le courant injecté et cette étude a dû être abandonnée. Au mois d'avril 2009 ce travail a été complètement réorienté vers l'étude de l'injection et la détection optique de spins dans le silicium depuis une électrode déposée par pulvérisation cathodique. Si les thématiques sont proches, les différences dans les matériaux utilisés nécessitent d'acquiescer un nouvel ensemble de techniques expérimentales.

Ce manuscrit se divise en quatre chapitres : les deux premiers situent le cadre de ce travail et les méthodes utilisées. Les résultats obtenus sont concentrés dans les chapitres trois et quatre. Pour injecter des spins dans un semi-conducteur, il faut d'une part les créer et donc fabriquer un *injecteur*, et d'autre part étudier le transport polarisé en spin dans le semi-conducteur et créer un *détecteur* pour ces spins. Le plan de ce manuscrit est découpé suivant les deux grands axes du sujet traité.

Le premier chapitre est consacré à une revue de l'état de l'art de l'injection de courant polarisé en spin dans les semi-conducteurs. La plupart des résultats importants présents dans la littérature jusqu'en 2009 y sont mentionnés, classés en deux catégories suivant la manière dont est détecté ce courant. Après avoir mentionné les travaux ayant conduit la communauté à s'intéresser à ce sujet, une première partie traite de la détection électrique du courant polarisé puis les travaux les plus proches du sujet de ce travail de thèse seront présentés : l'injection électrique et la détection optique de spins dans les semi-conducteurs.

Le second chapitre est entièrement dédié à la description des techniques expérimentales utilisées au cours de ce travail de thèse. La réorientation du sujet en cours d'exercice a nécessité d'apprendre de nouveaux procédés adaptés aux nouveaux matériaux utilisés. Ce chapitre est organisé en trois parties, la première consacrée aux techniques de croissance, la seconde aux mesures magnétiques et la dernière aux mesures optiques. Les techniques de caractérisations annexes – microscopie, rayon X – ne sont pas développées ici.

Le troisième chapitre traite des structures destinées à injecter un courant polarisé en spin dans les semi-conducteurs. Ces structures sont constituées d'une électrode ferromagnétique et d'une barrière tunnel. Un point expliquant les difficultés théoriques liées à la création d'un tel injecteur est fait avant de présenter les électrodes utilisées respectivement pour l'étude de l'injection de spins dans l'arséniure de gallium puis dans le silicium.

Et enfin le quatrième chapitre est consacré au transport polarisé en spin dans les semi-conducteurs. Ce chapitre est découpé de la même manière que le précédent : il débute par un rappel des principales difficultés théoriques de ce sujet, puis une partie aborde les avancées faites sur cette étude dans le GaAs et enfin les résultats obtenus sur l'étude du transport polarisé en spin dans le silicium sont présentés.



# Chapitre I

## Etat de l'art

### Sommaire

---

<b>1 Travaux pionniers sur l'injection de spin . . . . .</b>	<b>6</b>
1.1 Invention du transport polarisé en spin . . . . .	6
1.2 Premiers essais . . . . .	7
1.3 Points décisifs : l'injection à travers une barrière tunnel . . .	8
<b>2 Détection électrique . . . . .</b>	<b>9</b>
2.1 Détection électrique : problèmes théoriques . . . . .	10
2.2 Injection optique et détection électrique . . . . .	10
2.3 Injection et détection électrique . . . . .	12
<b>3 Injection électrique et détection optique . . . . .</b>	<b>16</b>
3.1 Electrode non métallique . . . . .	17
3.2 Electrode métallique à aimantation planaire . . . . .	18
3.3 Injection en rémanence : électrode à aimantation perpendi- culaire . . . . .	20

---

La *spintronique* ou utilisation du degré de liberté de spin en électronique est un sujet d'étude relativement récent. Si la conduction dépendante du spin dans les métaux ferromagnétiques a été proposée par Mott dès 1936 [Mott, 1936], peu de travaux ont été publiés avant ceux de Fert *et al.* à la fin des années 1960 [Fert, 1968] [Fert, 1976]. Ce domaine a connu un regain d'intérêt avec la découverte de la Magnétorésistance géante en 1988 par Baibich *et al.* [Baibich, 1988] puis Binash *et al.* [Binash, 1989].

L'étude des phénomènes dépendant de spins dans les semi-conducteurs a été initiée par la publication intitulée *Electronic analog of the electro-optic modulator* de Datta et Das en 1989 [Datta, 1990]. Dans ce travail ils imaginent un transistor à spins, utilisant le degré de liberté offert par les spins des électrons dans les matériaux semi-conducteurs usuellement utilisés pour leurs propriétés de manipulation de charges. Les trois étapes clefs pour réaliser un tel transistor sont l'injection,

la manipulation et la détection électrique d’un courant polarisé en spin dans un matériau semi-conducteur. *Injecter* des spins consiste à créer dans le matériau un courant présentant un déséquilibre entre les deux directions de spins. *Manipuler* les spins signifie de savoir faire passer volontairement les charges d’un état de polarisation à l’autre et les *détecter* signifie de savoir mesurer le déséquilibre de population entre les deux canaux de spins. Ces trois étapes doivent être réalisées *électriquement*, c’est à dire uniquement en utilisant un champ électrique ; il existe en effet d’autres moyens pour injecter et détecter des spins – grâce à des techniques optiques – ou les manipuler – via un champ magnétique – mais qui ne permettent pas l’intégration dans un transistor.

Les études sur le transport polarisé dans les semi-conducteurs n’ont pas connu de grandes avancées jusqu’au début des années 2000 et la parution de travaux théoriques précisant les conditions à réunir pour pouvoir injecter et détecter électriquement des spins. Une fois ces conditions comprises, de nombreuses équipes se sont attelées à la réalisation du transistor proposé par Datta et Das. Malgré des avancées certaines, un dispositif permettant d’injecter et de détecter électriquement des spins dans un semi-conducteur n’a pas encore été démontré. Parallèlement d’autres groupes ont cherché à valider indépendamment l’injection de spin, en faisant varier les électrodes et les semi-conducteurs pour mieux comprendre les problèmes liés à cette étape.

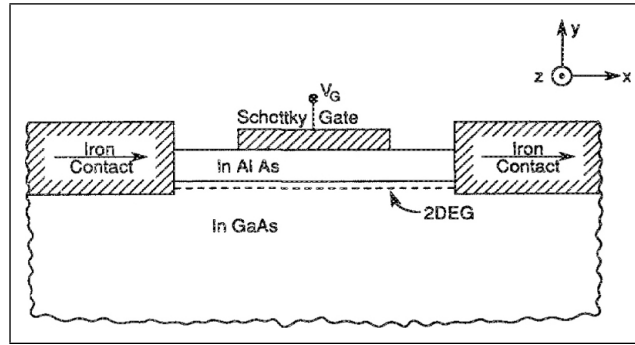
## 1 Travaux pionniers sur l’injection de spin

### 1.1 Invention du transport polarisé en spin

L’article fondateur qui a motivé les travaux sur l’injection et la détection de spin dans les semi-conducteurs est une proposition théorique de S. Datta et B. Das [Datta, 1990]. Dans ce papier, ils démontrent la possibilité d’un *Electronic analog of the electro-optic modulator*, à savoir d’utiliser le degré de liberté de spin en électronique. Un modulateur electro-optique est un transistor optique comprenant un polariseur et un analyseur entre lesquels est inséré un cristal électro-optique. En appliquant une tension sur le cristal, il est possible de modifier la polarisation de l’onde incidente et de l’aligner ou non avec l’analyseur pour que l’ensemble laisse ou non passer le signal.

La solution proposée pour réaliser un transistor à spins est de remplacer la lumière par un courant électrique, le polariseur et l’analyseur par des électrodes ferromagnétiques et le cristal électro-optique par un canal semi-conducteur comme le montre la figure I.1 page ci-contre. Le dispositif ainsi créé est alors l’analogue d’un modulateur électro-optique où la polarisation de la lumière est remplacée par

la polarisation en spin du courant électrique<sup>1</sup>. Entre les deux électrodes ferromagnétiques, les spins peuvent être manipulés dans le canal semi-conducteur par application d'une tension de grille. La manipulation de spins par un champ électrique grâce à l'effet *Rashba* est présenté dans la partie 1.4.2 page 132.



**FIGURE 1.1:** D'après [Datta, 1990]. Représentation schématique du transistor imaginé par Datta et Das. Le courant polarisé est injecté dans le canal semi-conducteur depuis une électrode ferromagnétique, il est manipulé via l'effet Rashba par une tension de grille et la détection se fait grâce à une autre électrode ferromagnétique.

Dans cette publication, Datta et Das ne démontrent pas expérimentalement la réalisation de leur transistor mais proposent la solution pour le réaliser et jettent les bases de la spintronique, à savoir : injecter, détecter et manipuler électriquement des spins dans un semi-conducteur.

## 1.2 Premiers essais

Une des premières mises en évidence de l'injection de spins depuis un métal ferromagnétique vers un matériau semi-conducteur est l'œuvre de Alvarado *et al.* [Alvarado, 1992] en 1992. L'injection de spins est observée depuis une pointe de Microscope à Effet Tunnel recouverte de nickel. Le courant polarisé injecté par effet tunnel dans un substrat de GaAs est détecté en observant la polarisation de la lumière émise lors de la recombinaison des électrons avec les trous du substrat fortement dopé *p*. Cet injecteur à l'aide d'une pointe mobile n'est pas réellement la première étape vers la réalisation d'un transistor puisque ce n'est pas un dispositif qui serait intégrable dans l'industrie, mais il a permis la première observation de

1. La polarisation du courant est définie par  $P = \frac{J_+ - J_-}{J_+ + J_-}$  où  $J_+$  est le courant porté par les électrons de spin  $\uparrow$  et  $J_-$  par les électrons de spin  $\downarrow$ .

l’injection d’un courant polarisé en spin dans un matériau semi-conducteur. L’utilisation d’une méthode optique pour détecter les spins sera reprise dans de nombreux travaux. Elle permet d’étudier séparément l’étape d’injection de spins dans les semi-conducteurs en s’affranchissant des problèmes liés à la détection électrique d’un courant polarisé.

Les premiers travaux cherchant à réaliser un dispositif épitaxié pour l’injection de spin datent de 1999. Deux approches ont été tentées, à savoir l’injection depuis un métal non magnétique à travers un semi-conducteur magnétique en présence d’un champ magnétique et l’injection directe depuis un métal ferromagnétique. Si la première approche a montré des résultats (voir 3.1 page 17), la deuxième publication a été controversée.

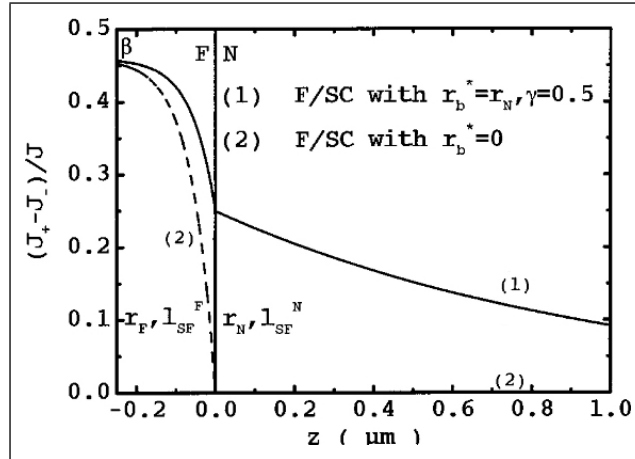
Il s’agit du travail de Hammar *et al.* [Hammar, 1999] paru en 1999 utilisant la prédiction théorique de Johnson [Johnson, 1998], à savoir que le transport polarisé en spin depuis un métal ferromagnétique vers un gaz d’électrons bidimensionnel peut être détecté par une mesure de la résistance d’interface entre les deux matériaux. Hammar *et al.* élaborent un dispositif dans lequel l’injection de spins se fait dans un gaz d’électrons bidimensionnel confiné dans une couche mince d’InAs depuis une électrode ferromagnétique. La nature du transport entre l’électrode et le gaz est mal définie – tunnel ou non – et les spins sont détectés grâce aux modulations de résistivité d’interface. L’interprétation de ces résultats comme preuve de l’injection de spins a été rejetée par Van Wees [van Wees, 2000] et Monzon *et al.* [Monzon, 2000]. Ce papier est l’unique publication revendiquant l’injection de spins dans un semi-conducteur depuis une électrode ferromagnétique avant la publication des travaux théoriques explicitant les conditions à réunir pour réussir cette injection (voir 1.3).

D’autres travaux relatant le transport polarisé en spin entre un métal ferromagnétique et un semi-conducteur en utilisant une barrière tunnel comme interface sont cependant parus (voir 3 page 16) avant la publication des papiers théoriques préconisant une telle interface.

### 1.3 Points décisifs : l’injection à travers une barrière tunnel

Les premiers travaux pour réaliser le transistor à spin de Datta et Das se sont confrontés au problème de l’injection de spin depuis un métal ferromagnétique dans un semi-conducteur. En 2000, Schmidt *et al.* [Schmidt, 2000] montrent théoriquement que les difficultés rencontrées viennent de la dépolarisation du courant à l’interface entre les deux matériaux. Le point crucial pour savoir injecter des spins et donc réaliser le transistor à spin est de réussir à contacter correctement un métal ferromagnétique à un matériau semi-conducteur. En revanche ils n’apportent pas la solution à ce problème connu sous le nom de *conductivity mismatch*.

La solution est apportée par Rashba [Rashba, 2000] en 2000, puis peu de temps après par Fert et Jaffrès [Fert, 2001] en 2001. Il s'agit d'introduire à l'interface entre le métal et le semi-conducteur une interface dont la résistance dépend du canal de spin considéré. Les deux publications proposent d'utiliser une barrière tunnel comme interface répondant à ce critère (voir partie 1.3 page 58).



**FIGURE I.2:** D'après [Fert, 2001]. Graphe représentant la polarisation du courant en fonction de la distance à l'interface métal ferromagnétique (F) semi-conducteur (N). La courbe (1) montre l'évolution de cette polarisation lorsqu'une barrière tunnel est introduite à l'interface, la courbe (2) en absence de barrière tunnel : la polarisation du courant est nulle dans le semi-conducteur.

## 2 Détection électrique

La réalisation du transistor proposé par Datta et Das en 1989 nécessite de savoir injecter des spins dans un semi-conducteur puis de les détecter. Des travaux ont été menés pour essayer de valider simultanément ces deux étapes grâce à des mesures électriques permettant de mettre en évidence le transport de spins.

Les travaux sur l'injection et la détection électriques de spins peuvent se classer en deux catégories : celles où les mesures électriques sont faites directement sur le courant polarisé – expériences les plus proches de la réalisation du transistor de Datta et Das –, ce sont les mesures locales et celles où l'injection de spins entraîne des modifications des caractéristiques électriques du dispositif mais mesurée en d'autres points. Ce sont les mesures non locales.

## 2.1 Détection électrique : problèmes théoriques

Dans des travaux qui datent de 2000 [Rashba, 2000], Rashba montre que l’injection – ou la détection, le principe est le même – de spins depuis une électrode métallique vers un semi-conducteur nécessite une résistance d’interface dépendant du spin, typiquement une barrière tunnel (voir 1.3 page 8). Cette condition qui impose que la résistance d’interface soit grande devant la *résistance de spin*<sup>2</sup> du semi-conducteur a permis, lorsqu’elle est remplie, de valider l’injection de spin (voir 3 page 16). En revanche, la réalisation d’une structure telle que celle proposée par Datta et Das permettant d’injecter des spins dans un canal semi-conducteur entre deux électrodes ferromagnétiques et de les détecter électriquement en mesurant les différences de résistance suivant les configurations magnétiques des électrodes – parallèle ou antiparallèle – n’a pas encore été établi, malgré de probables nombreuses tentatives.

En 2007, Fert *et al.* [Fert, 2007] montrent à partir des calculs réalisés en 2001 [Fert, 2001] et adaptés à cette géométrie que la condition nécessaire pour permettre l’injection de spins n’est pas suffisante pour réaliser le transistor de Datta et Das. En effet, les calculs montrent qu’il ne peut y avoir une variation significative de résistance entre les configurations parallèles et antiparallèles de l’aimantation des électrodes que si la résistance d’interface  $r_b$  est petite devant  $r^*$  définie par :

$$r^* = r^{SC} \frac{l_{sf}^{SC}}{L_0} \quad (I.1)$$

où  $r^{SC}$  est la *résistance de spin*,  $l_{sf}^{SC}$  la longueur de cohérence de spin et  $L_0$  la longueur du canal semi-conducteur. Il existe donc une fenêtre de résistance possible pour la résistance d’interface qui permettrait de réaliser le transistor de Datta et Das, fenêtre qui ne peut exister que si la distance entre les deux électrodes est inférieure à la longueur de cohérence de spin, fenêtre dont la largeur diminue lorsque la distance entre les électrodes augmente (voir I.3).

Cette condition sur l’ajustement de la résistance d’interface n’a pas encore été remplie expérimentalement.

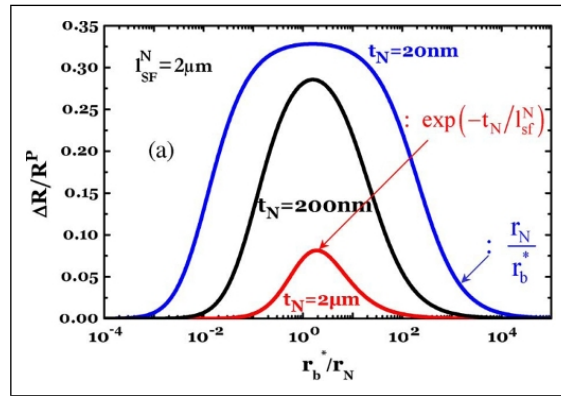
## 2.2 Injection optique et détection électrique

A l’instar de ce qui a été réalisé sur l’étude de l’injection de spins en utilisant un moyen de détection optique, certains groupes se sont attelés à injecter optiquement des spins en pompant dans le semi-conducteur grâce à un laser polarisé et à détecter électriquement cette accumulation de spins.

---

2. La *résistance de spin* est définie comme le produit de la résistivité par la longueur de cohérence de spin dans un matériau





**FIGURE I.3:** D'après [Fert, 2007]. Courbe théorique montrant la variation possible de résistance totale d'une structure de type transistor proposé par Datta et Das [Datta, 1990] suivant de la configuration magnétique des électrodes pour différentes longueurs de canal semi-conducteur. Cette variation de résistance normalisée par la valeur de la résistance de la structure en configuration parallèle est tracé en fonction du rapport de la résistance d'interface électrode–canal semi-conducteur sur la résistance de spin du canal. Il est donc manifeste que ces deux grandeurs doivent être équivalentes pour pouvoir réaliser ce transistor – une trop faible valeur de la résistance d'interface limiterait l'injection, un trop grande valeur empêcherait la détection.

Les premiers travaux révélant électriquement une accumulation de spins créée optiquement dans le GaAs ont été publiés en 1995 par Prins *et al.* [Prins, 1995]. Bien que les travaux de Rashba expliquant la nécessité d’introduire une barrière tunnel entre métal et semi-conducteur ne soient pas encore connus, ils remarquent des variations du courant à travers leur électrode Alumine-Cobalt lorsqu’ils pompent dans le GaAs avec un laser polarisé. Ces variations trop importantes et dépendantes de la longueur d’onde ne peuvent s’expliquer par de simples effets magnéto-optique dans le Cobalt et sont attribués à la polarisation du courant. En s’appuyant sur les travaux de d’Alvarado 1.2 page 7 – sur l’injection de spins depuis une pointe STM – ils observent que ce phénomène n’existe qu’en présence de barrière tunnel.

Hirohata *et al.* ont exploré [Hirohata, 1999] [Hirohata, 2000] [Hirohata, 2001] [Hirohata, 2002] le transport polarisé en spin à l’interface métal–semi-conducteur en utilisant la même technique d’injection optique de spins dans le GaAs. Dans leur première publication, ils montrent que de faibles effets de transport tunnel polarisé existent à température ambiante à travers la barrière Schottky formée par le contact NiFe-GaAs. Ils explorent ensuite ce système pour valider la détection électrique de spins et connaître les dépendances d’une telle détection : épaisseur de l’électrode magnétique, dopage du semi-conducteur, longueur d’onde du laser, . . . Ils étudient également d’autres couches magnétiques, principalement le Cobalt et le fer qui montre les mêmes efficacités en détection que celles démontrées en injection par Zhu *et al* (voir 3.2.1).

## 2.3 Injection et détection électrique

La validation séparée des étapes d’injection et de détection de spins dans les semi-conducteurs pourrait laisser espérer une mise au point rapide du transistor à spin. Cependant les conditions énoncées par Fert *et al.* dans la section 2.1 page 10 sont trop drastiques et n’ont pas pu être directement réalisées.

Des résultats montrant l’injection et la détection électrique de spin ont toutefois été rapportés. Les plus probants ont eu lieu en géométrie non locale, c’est à dire lorsque l’injection et la détection se font à partir de jeux d’électrodes distincts. Des expériences en géométrie locale ont été réalisées mais les résultats ne permettent pas de valider directement les deux étapes.

### 2.3.1 Mesures non locales

Le principe des mesures non locales est expliqué en utilisant les notations de la figure I.4 page ci-contre : un courant est injecté entre deux électrodes ferromagnétiques – 1 et 3 sur le schéma – créant une accumulation de spins à proximité de l’injecteur. La tension est mesurée entre deux autres électrodes – 4 et 5 sur le schéma – dont une est assez proche de l’injecteur pour être sensible à l’accumulation de

La même géométrie est utilisée par Van't Erve *et al.* [van 't Erve, 2007] en 2007 pour étudier le transport polarisé dans le silicium entre des électrodes de fer contactées sur le silicium via des barrières tunnel d'Alumine. Des effets de magnétorésistance de l'ordre du dixième de pourcent à 10 K sont observés, ainsi qu'une oscillation de la tension de détection en fonction d'un champ magnétique transverse appliqué : signature de l'effet Hanle.

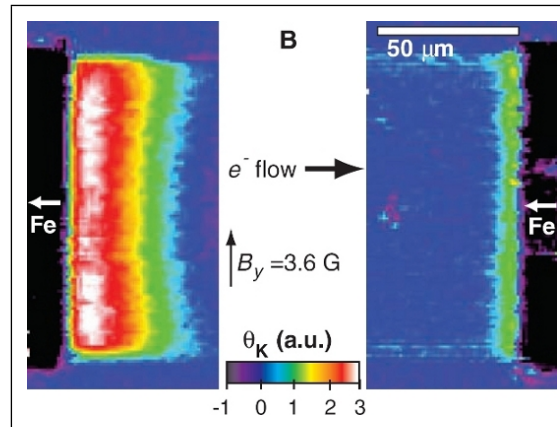
### 2.3.2 Mesures locales

En 1999, Hammar *et al.* annoncent injecter et détecter électriquement des spins dans un gaz d'électrons bidimensionnel (voir la présentation de ce travail dans au paragraphe 1.2 page 8), mais ce travail reste controversé.

Plusieurs autres travaux relatant l’injection et la détection électrique de spins en configuration locale existent, mais aucun ne permet à ce jour d’élaborer le transistor de Datta et Das.

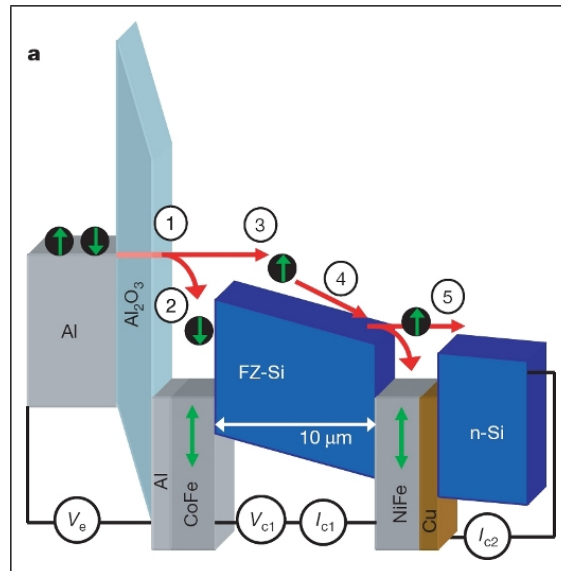
**a Injection et détection depuis une seule électrode** En 2006, Lou *et al.* [Lou, 2006] utilisent un effet démontré théoriquement par Ciuti *et al.* [Ciuti, 2002] [McGuire, 2004] pour injecter et détecter électriquement une accumulation de spins dans du GaAs dopé n. Lorsque du courant est imposé depuis une électrode de fer vers une autre, l’accumulation de spins transmise à travers la barrière Schottky dans le semi-conducteur entraîne une résistance effective de barrière plus importante et donc une augmentation de la tension pour faire passer le courant fixé. L’accumulation de spin est détruite par effet Hanle lorsqu’un champ magnétique transverse est appliqué. En mesurant la tension entre les deux électrodes en fonction du champ magnétique appliqué, Lou *et al.* ont donc vu un pic de tension à champ nul, pic prouvant l’accumulation de spins dans le semi-conducteur. Cette expérience est donc une mesure locale d’injection et de détection de spins dans un semi-conducteur mais ne permet pas d’envisager la réalisation d’un transistor.

**b Imagerie en transport latéral** Un travail utilisant la géométrie latérale propre au transistor envisagé a été publié en 2005 par Crooker *et al.* [Crooker, 2005]. Il s’agit en fait d’imager par effet Kerr polaire l’accumulation de spins au niveau de la source et du drain d’un tel transistor, réalisé grâce à des électrodes de Fe déposée sur un substrat de GaAs. L’imagerie Kerr montre bien (voir figure I.5) l’accumulation de spin liée à l’injection depuis la source et à la réflexion sur le drain.



**FIGURE I.5:** D’après [Crooker, 2005]. Imagerie par effet kerr polaire de l’accumulation de spins au niveau de la source – à gauche – et du drain – à droite – d’une structure telle que celle envisagée pour réaliser le transistor de Datta et Das.

**c Transport par électrons chauds** Le travail qui se rapproche le plus de la réalisation éventuelle d'un transistor à spin est celui proposé par Appelbaum *et al.* [Appelbaum, 2007] en 2007. Dans cette publication, des électrons de haute énergie sont injectés depuis une source d'Aluminium et polarisés via une électrode de cobalt-fer dans du silicium. Puis ils sont détectés électriquement par une autre électrode magnétique constituée de nickel-fer. La signature d'une telle détection est démontrée par la variation d'intensité du courant lorsque les deux électrodes sont en configuration parallèle ou anti-parallèle – par renversement de l'aimantation de l'électrode de nickel-fer – ainsi que par l'apparition d'oscillations d'intensité du courant détecté en présence d'un champ magnétique transverse. Ces oscillations sont dues à la précession des spins autour du champ et sous des conditions idoines il est possible d'observer des angles de précession de  $4\pi$ .

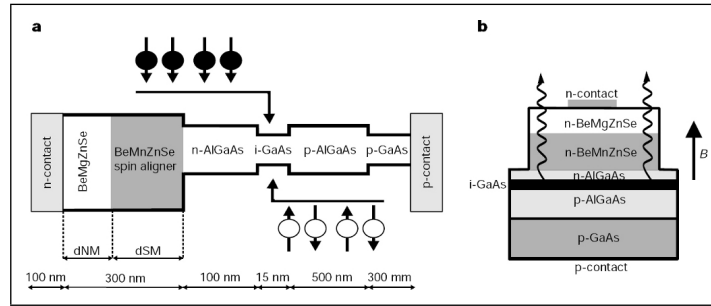


**FIGURE I.6:** D'après [Appelbaum, 2007]. Dispositif utilisé par Appelbaum *et al.* pour injecter et détecter électriquement des spins dans du silicium.

Ce dispositif est donc une réalisation pratique du transistor de Datta et Das. Cependant les spins sont manipulés par un champ magnétique et non par un champ électrique via l'effet Rashba ce qui ne permet pas directement une éventuelle application. Et si l'utilisation d'électrons chauds a permis de s'affranchir des conditions sur les résistances de barrières énoncées par Fert *et al.*, elle rend la compréhension de la physique d'un tel système extrêmement difficile.

### 3 Injection électrique et détection optique

La réalisation du transistor de Datta et Das nécessite de savoir simultanément injecter des spins dans un semi-conducteur et de les détecter. Devant la difficulté de réaliser un tel dispositif, l’idée de séparer les deux étapes et de valider séparément l’injection est apparue. L’utilisation d’une spin-Led – un puits quantique permettant de confiner les porteurs polarisés inséré dans un diode p-i-n – pour détecter optiquement les spins dans le semi-conducteur a fait l’objet d’un brevet déposé par Jonker en 1999 [Jonker, 1999]. Dans une telle structure, les porteurs polarisés – typiquement des électrons – injectés dans le semi-conducteur se recombinent au niveau du puits avec ceux non polarisés issus du substrat. En raison des règles de sélection optique, la lumière émise est partiellement polarisée circulairement et l’analyse de cette polarisation permet de détecter l’injection de spins. La plupart des travaux ont été réalisés sur l’injection dans les semi-conducteurs à gap direct – typiquement le GaAs – car les propriétés optiques de tels matériaux sont mieux connues. Les études dans le silicium sont récentes et encore peu développées.



**FIGURE I.7:** D’après [Fiederling, 1999]. Schéma d’un dispositif de détection optique de spins dans les semi-conducteurs. (a) Schéma de la structure de bande de l’injecteur et du détecteur de spins proposé par Fiederling et al.. En noir les électrons polarisés et en blanc les trous issus du substrat se recombinent dans le puits de GaAs. (b) Schéma du dispositif mis en forme.

Pour pouvoir détecter optiquement des spins dans un puits quantique, il est nécessaire que l’orientation de ceux-ci soit perpendiculaire à la direction de confinement du puits et donc que l’aimantation de l’injecteur soit perpendiculaire au plan de la couche.

Les différents injecteurs peuvent alors se classer en deux grandes catégories : ceux pour lesquels l’application d’un champ magnétique extérieur est nécessaire et ceux, plus proches d’une éventuelle application, qui permettent de valider l’injection de spins sans champ magnétique externe. Dans la première catégorie se trouvent aussi bien les injecteurs constitués d’une électrode métallique non-magnétique

couplée à un aligneur de spins semi-conducteur magnétique et ceux constitués d'une électrode métallique ferromagnétique à aimantation planaire. Dans le second cas les études se sont concentrées sur l'injection à partir d'une électrode métallique ferromagnétique à aimantation perpendiculaire. Lorsque l'injecteur est purement métallique, il a été démontré que l'injection devait se faire à travers une barrière tunnel.

### 3.1 Electrode non métallique

Les premiers résultats montrant un dispositif d'injection de spins dans un semi-conducteur ont été établis depuis un contact métallique non magnétique couplé à un aligneur de spin semi-conducteur – semi-conducteur paramagnétique avec un grand facteur  $g$  ou semi-conducteur ferromagnétique. Cette approche dans laquelle les spins sont alignés dans le semi-conducteur permet de s'affranchir du problème de *conductance mismatch*.

En 1999, Fiederling *et al.* [Fiederling, 1999] démontrent l'injection de spin dans une diode d'AlGaAs – un puits de GaAs dans une structure p-i-n d'AlGaAs – depuis une électrode de BeMnZnSe en mesurant la polarisation de la lumière émise par le puits de GaAs. A faible concentration de Mn et à basse température, le BeMnZe est un semi-conducteur paramagnétique avec un très grand facteur  $g$ , ce qui induit un effet Zeeman important et le rend bon candidat comme aligneur de spin en présence de champ magnétique. Pour un champ magnétique de 3 Teslas et une épaisseur de BeMnZnSe de 300 nm, la polarisation de la lumière émise est de 43%, ce qui correspond à une polarisation du courant injecté de l'ordre de 90% à basse température.

Les semi-conducteurs ferromagnétiques semblent être de bons candidats pour injecter des spins dans les semi-conducteurs, mais hormis le travail d'Ohno *et al.* (voir 3.3) qui a depuis été contesté, cette voie est restée peu explorée. La raison principale est que le manganèse utilisé dans la plupart des semi-conducteurs ferromagnétiques joue simultanément le rôle de dopant p. Les spins injectés depuis un tel matériau sont donc nécessairement portés par des trous. Or les temps de cohérence de spin des trous dans les semi-conducteurs sont beaucoup plus faibles que ceux des électrons à cause de l'important couplage spin-orbite. La dépolarisation du courant étant plus rapide, l'injection est plus difficile à étudier.

En 2004, Kioseoglou *et al.* [Kioseoglou, 2004] utilisent un semi-conducteur ferromagnétique de type n, le  $\text{CdCr}_2\text{Se}_4$  pour injecter des spins dans une diode de GaAs-AlGaAs. A basse température et en présence d'un champ magnétique de 0,5 Tesla pour redresser l'aimantation de la couche de  $\text{CdCr}_2\text{Se}_4$ , la polarisation de la lumière émise par le puits de GaAs est de l'ordre de 4%.

### 3.2 Electrode métallique à aimantation planaire

Si les premières démonstrations d’injection de spin ont été réalisées grâce à des aligneurs de spins semi-conducteurs magnétiques, la plupart des travaux sur ce sujet se sont focalisés sur les électrodes métalliques, plus proches d’une éventuelle application. Les températures de Curie des semi-conducteurs magnétiques étant actuellement trop basses pour envisager d’éventuelles applications. Depuis les travaux de Schmidt, Rashba et Fert, il est entendu que l’injection depuis une électrode métallique doit se faire par transport tunnel – à travers une barrière tunnel ou simplement en tunnelant à l’interface métal–semi-conducteur si le contact forme naturellement une barrière Schottky. Les électrodes métalliques sont des films minces ferromagnétiques dont la direction de l’aimantation se trouve dans le plan de la couche. Les règles de sélection dipolaire dans les structures semi-conductrices servant à la détection optique imposent que l’orientation des spins injectés soit alignée avec la direction de croissance du semi-conducteur. L’étude de l’injection depuis une électrode à aimantation planaire nécessite donc un champ magnétique extérieur pour redresser l’aimantation et ainsi orienter les spins dans la bonne direction.

Si la détection optique des spins dans les semi-conducteurs a permis de se focaliser sur l’injecteur et d’explorer beaucoup de possibilités d’injection, elle a contraint les études dans les matériaux permettant de faire des mesures d’électroluminescence. Les matériaux les plus simples pour ces études sont les semi-conducteurs à gap direct, en particulier les semi-conducteurs III-V. Les semi-conducteurs à base d’Arsenic sont les plus faciles à épitaxier et ont concentré la plupart des études. Des résultats récents montrent qu’il est possible de faire électroluminescer des structures à base de silicium, ce qui a permis d’étudier l’injection de spin dans ce matériau. Outre l’intérêt fondamental d’étudier le transport polarisé en spin dans un matériau possédant un très faible couplage spin-orbite<sup>3</sup>, ces résultats se rapprochent d’une éventuelle application étant donné sa prépondérance dans l’industrie.

#### 3.2.1 Injection dans les semi-conducteurs à gap direct

En 2001, Zhu *et al.* [Zhu, 2001] réussissent pour la première fois à injecter et détecter optiquement des spins dans du GaAs depuis une électrode ferromagnétique. Le détecteur est un puits d’InGaAs inséré dans une diode de GaAs, diode sur laquelle est épitaxié l’injecteur, une couche mince de Fer. Malgré l’absence de barrière tunnel, ils observent une polarisation circulaire de la lumière émise par leur structure de 2%. Cette polarisation optique est directement liée à la polarisation en

---

3. Le couplage spin-orbite est une caractéristique très importante des matériaux dans lesquels est étudié le transport polarisé en spin. Comme il sera vu dans la partie 1 page 114, le couplage spin-orbite est aussi bien responsable de la dépolarisation d’une population de spins que nécessaire pour les manipuler via l’effet Rashba.



spin du courant injecté. Ce résultat semble s'opposer aux prédictions de Schmidt *et al.* – qui démontrent que le contact direct métal–semi-conducteur entraîne une dépolarisation du courant –, mais Zhu *et al.* justifient ce résultat en montrant que le transport à l'interface Fe–GaAs est tunnel à travers la barrière Schottky formée par ce contact. Si les rendement d'injection n'atteignent pas des valeurs très importantes, ils sont en revanche démontrés jusqu'à température ambiante.

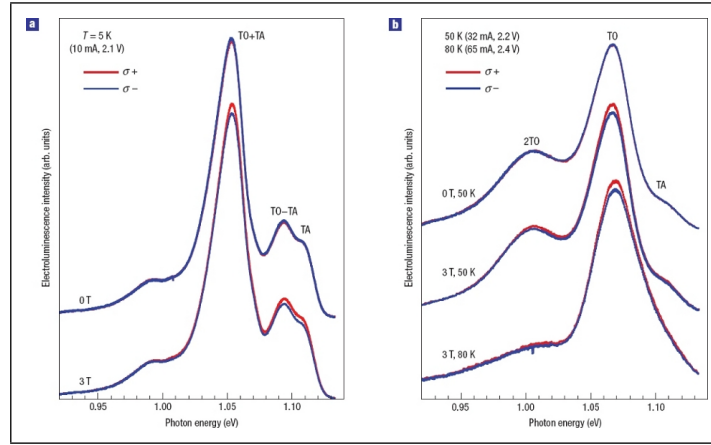
Presque simultanément Hanbicki *et al.* [Handicki, 2002] étudient l'injection de spin avec un système similaire : à partir d'une électrode de Fe, ils observent l'injection de spin dans de l'AlGaAs. La détection se fait à l'aide d'un puits de GaAs enterré et ils utilisent de même la barrière Schottky formée par le contact métal–semi-conducteur. Les rendement d'injection sont plus importants – 8% de polarisation optique à 90 K et 4% à 240 K – mais ne sont pas donnés à température ambiante.

### 3.2.2 Injection dans le silicium

L'injection de spin dans les semi-conducteurs à gap direct a été l'objet de nombreuses études grâce aux propriétés optiques bien maîtrisées de tels matériaux. Malgré l'intérêt évident d'étudier le transport polarisé en spin dans le silicium – peu de spin-orbite donc longue durée de cohérence de spin et prépondérance du silicium dans l'industrie des semi-conducteurs – la méconnaissance des propriétés optiques de ce matériau a ralenti les avancées sur l'injection de spins.

La première publication utilisant les propriétés d'électroluminescence du silicium pour détecter un courant polarisé est le travail de Jonker *et al.* [Jonker, 2007] en 2008. L'injecteur utilisé est une électrode métallique de Fer qui nécessite un champ magnétique extérieur de l'ordre de 2,2 Teslas pour être saturée hors-plan. Les spins sont injectés à travers une barrière tunnel d'Alumine dans une diode p-i-n de silicium et émettent une lumière polarisée circulairement en se recombinant avec les trous issus du substrat. La polarisation de la lumière émise varie de 2% à 3,7% à 5 K suivant le pic de luminescence considéré et de 1% à 2% à 80 K.

Cette étude a été complétée par les travaux de Kioseoglou *et al.* [Kioseoglou, 2009] en 2009 dans lesquels sont comparés les injections depuis une électrode de Fer à travers une barrière tunnel d'Alumine et à travers une barrière Schottky formée par le simple contact Fe-silicium. L'injection à travers une barrière d'Alumine donne des résultats similaires à ceux rapportés par Jonker *et al.* alors que le taux d'injection est dégradé de 50% lorsqu'elle est effectuée à travers la jonction Scottky formée par le contact Fer-silicium. Cette dégradation vient d'états d'interface complexes et d'interdiffusion entre le Fer et le silicium, interdiffusion empêchée par l'Alumine.



**FIGURE I.8:** D’après [Jonker, 2007]. Courbes d’électroluminescence analysées selon les polarisations  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  à (a) 5 K et (b) 50 K et 80 K

### 3.3 Injection en rémanence : électrode à aimantation perpendiculaire

La première tentative pour injecter des spins dans un semi-conducteur sans l’aide d’un champ magnétique est l’œuvre de Ohno *et al.* [Ohno, 1999] en 1999. Le dispositif étudié est une structure semi-conductrice à base de GaAs. L’injecteur est composé d’une électrode métallique non magnétique et d’un aligneur de spin de GaMnAs. En traversant cette couche, les spins injectés s’alignent le long de la direction de l’aimantation, dans le plan de la couche. Le détecteur est un puits d’InGaAs enterré dans une diode p-i-n de GaAs. Dans cette lettre, Ohno *et al.* affirment avoir détecté une polarisation de la lumière émise latéralement par la spin-led, prouvant ainsi l’injection électrique de spins dans le semi-conducteur.

Ce résultat a été fortement contesté par Fiederling *et al.* en raison de la détection latérale de la lumière et de la direction de l’orientation des spins. En effet, ceux-ci ne sont pas alignés dans la direction de confinement du puits, ainsi les règles de sélection dipolaire qui lient la polarisation du courant à celle de la lumière ne s’appliquent pas. Après avoir reproduit l’expérience de Ohno *et al.*, ils ont pu montrer qu’en ayant une aimantation strictement planaire et une détection latérale, aucune polarisation de la lumière n’était mesurable.

Le détail du calcul des règles de sélection dipolaire en émission latérale pour un puits quantique à base de GaAs est présenté au chapitre 2 de l’ouvrage *Optical Orientation* de F. Meier et B.P. Zakharchenya [Meier, 1984].

L’injection de spin sans appliquer de champ magnétique extérieur nécessite donc un injecteur dont l’aimantation est hors du plan. Il est plus facile de réunir de telles conditions avec une électrode métallique à forte anisotropie uniaxiale.

La première démonstration d'une telle injection a été apportée par Gerhardt *et al.* [Gerhardt, 2005] en 2005. La structure étudiée comprend un détecteur constitué d'une spin-led GaAs-InGaAs et un injecteur métallique. Cet injecteur est un empilement de 10 bicouches Tb/Fe sur 2,6 nm de Fer épitaxié sur le GaAs. En raison de l'anisotropie d'une telle structure, l'aimantation de l'injecteur se trouve perpendiculaire au plan de la couche et il est ainsi possible d'injecter des spins sans s'aider d'un champ magnétique. Des valeurs de polarisation de lumière de 0,5% ont été observées avec ces structures.

Il n'existe que peu de travaux sur l'injection de spins dans les semi-conducteurs depuis une électrode à aimantation rémanente. Les seuls résultats qui existent montrent l'injection dans les semi-conducteurs III-V, en particulier le GaAs. Le but de ce travail de thèse aura été d'apporter la première démonstration d'injection de spin en rémanence dans le silicium.



## Chapitre II

# Techniques expérimentales

### Sommaire

---

<b>1 Techniques de croissance . . . . .</b>	<b>24</b>
1.1 Epitaxie par Jets Moléculaires : EJM . . . . .	24
1.2 Pulvérisation cathodique . . . . .	29
1.3 Dépôt Chimique en phase Vapeur. . . . .	30
<b>2 Mesures magnétiques . . . . .</b>	<b>30</b>
2.1 Mesures par effet Kerr . . . . .	30
2.2 Magnétomètre à Squid . . . . .	33
2.3 Magnétomètre à Echantillon Vibrant . . . . .	34
2.4 Microscope à force atomique – Microscope à force magnétique . . . . .	34
<b>3 Caractérisation optique. . . . .</b>	<b>37</b>
3.1 Photoluminescence . . . . .	37
3.2 ElectroLuminescence : EL . . . . .	38

---

Ce travail de thèse a consisté à étudier l'injection de spins dans deux matériaux semi-conducteurs, le silicium et l'arséniure de gallium. Toutes les étapes expérimentales pour réaliser ces études ont été menées dans le cadre de ce travail, impliquant l'utilisation de nombreuses techniques expérimentales.

Les électrodes utilisées pour injecter le courant polarisé sont différentes selon les matériaux semi-conducteurs employés. Elles ont nécessité des modes et des bêtis de croissance différents. Leurs propriétés magnétiques n'ont également pas pu être mesurées par des méthodes identiques et si la manière de détecter la polarisation du courant injecté dans les matériaux semi-conducteurs est la même – par électroluminescence –, l'écart entre les longueurs d'onde qui leur sont associées nécessite d'utiliser deux bancs d'optique distincts.

Ce chapitre résume les principales techniques expérimentales utilisées au cours de ce travail.

## 1 Techniques de croissance

L'élaboration d'échantillons a constitué une part importante de ce travail de thèse. Les techniques d'élaboration de films minces peuvent se classer en deux grandes catégories : celles qui mettent en jeu des processus physiques de dépôts par évaporation et celles qui font intervenir des processus chimiques.

Les processus physiques utilisés pour faire évaporer les cibles peuvent être thermique – Ablation Laser, **Epitaxie par Jets Moléculaires** : technique utilisée pour élaborer les substrats et injecteurs lors de l'étude de l'injection d'électrons polarisés en spin dans l'Arséniure de Gallium – ou mécanique – **Pulvérisation Cathodique** : technique utilisée pour élaborer des injecteurs dans le Silicium. Les principales techniques mettant en jeux des processus chimiques sont l'Electro-déposition et différentes variantes de **Dépôt Chimique en phase Vapeur** : technique utilisée pour épitaxier les couches semi-conductrices sur substrat de Silicium.

### 1.1 Epitaxie par Jets Moléculaires : EJM

#### 1.1.1 Généralités

L'Epitaxie par Jets Moléculaires est une technique de croissance sous ultra-vide. Elle consiste à transférer l'ordre cristallin d'un substrat à la couche mince dont on réalise la croissance. En cela, elle s'oppose à la notion de simple dépôt lors duquel le substrat est un simple support pour une couche souvent amorphe ou polycristalline. L'épitaxie est une technique qui existe pour des matériaux très variés, aussi bien les semi-conducteurs que les métaux. Mais elle n'est possible que si le paramètre de maille de la couche épitaxiée est proche de celui du substrat pour que l'ordre cristallin puisse être maintenu sans défauts structuraux.

Suivant le type de matériaux, il existe quelques différences entre les bâtis d'EJM, principalement sur la méthode utilisée pour faire évaporer les cibles à déposer. Ces différences seront détaillées dans les paragraphes dédiés aux bâtis (voir 1.1.3 page 27 et 1.1.2 page suivante). Cependant, tous ont la même architecture, à savoir un sas d'introduction, relié à une chambre de préparation possédant généralement un four pour permettre de préparer les surfaces – généralement les nettoyer des éventuels contaminants – des substrats avant dépôt et la chambre de dépôt proprement dite.

Durant la première période de ce travail de thèse, l'ensemble des structures étudiées était élaboré en EJM. Même si les structures utilisées pour valider optiquement l'injection de spins dans le GaAs étaient fournies par le Laboratoire d'Analyse et d'Architecture des Systèmes (LAAS) de Toulouse, j'ai réalisé des croissances de GaAs avec le bâti semi-conducteur III-V du laboratoire SP2M/NPSC

lorsqu'on envisageait de reproduire l'expérience de Crooker [Crooker, 2005]. C'est donc ce bâti qui sera brièvement présenté dans la suite.

**a Diffraction Rheed** Un des principaux avantages de la croissance par EJM, outre la qualité des couches épitaxiées, est de pouvoir suivre l'évolution de la croissance *in situ*. Tous les bâtis utilisés possèdent un système de diffraction d'électrons haute énergie sous incidence rasante (*Reflection High Energy Electron Diffraction* : RHEED) qui permet de suivre en temps réel l'état de la surface de films minces pendant leur croissance. Un faisceau d'électrons de haute énergie – typiquement 40 keV – est focalisé sur l'échantillon sous une incidence quasiment rasante (de l'ordre de un ou deux degrés), les électrons sont diffractés par les atomes proches de la surface – à ces angles, la longueur de pénétration des électrons n'est que de quelques plans atomiques.

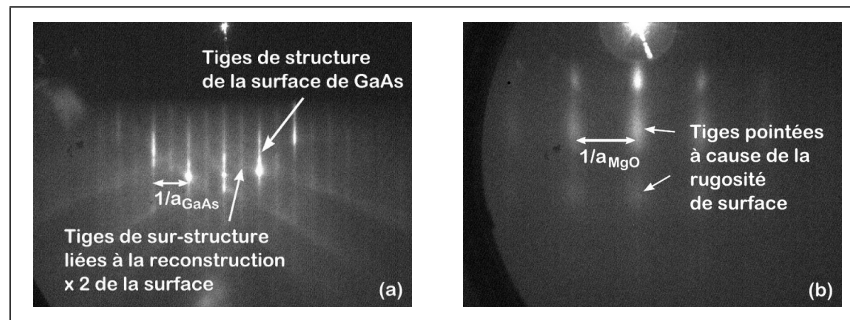
La longueur d'onde associée au faisceau d'électrons de haute énergie est donnée par :

$$\lambda = \frac{h}{mv} = 0,06 \text{ \AA} \quad (\text{II.1})$$

où  $h$  est la constante de Planck,  $v$  la vitesse des électrons envoyés et  $m$  leur masse.

La figure de diffraction obtenue par cette technique peut être représentée par l'intersection du réseau réciproque du cristal avec la sphère d'Ewald, de rayon  $2\pi/\lambda$ . Dans le cas d'un échantillon de structure cubique et de paramètre de maille  $a$  dans le plan, le réseau réciproque devient un jeu de droites perpendiculaires à la surface et distantes de  $2\pi/a$ . L'image de diffraction d'une surface plane doit correspondre aux points situés à l'intersection d'un ensemble de droites et d'une sphère. En réalité, il y a une certaine dispersion des électrons en longueur d'onde et le faisceau n'est pas parfaitement focalisé : la sphère d'Ewald est en fait une couronne sphérique. Il en résulte que l'image de diffraction obtenue dans le cas d'une surface monocristalline parfaitement plane correspond à des tiges verticales, lisses et nettes, séparées horizontalement d'une distance  $2\pi/a$ .

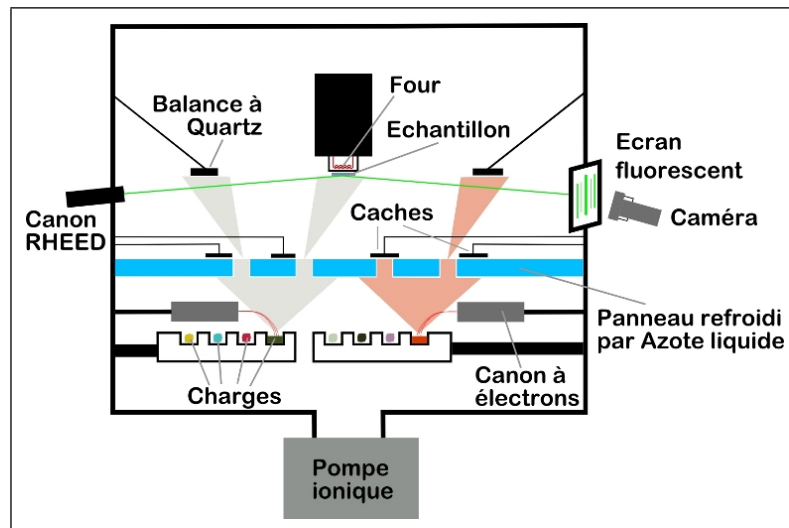
En revanche, si la surface de l'échantillon devient rugueuse les tiges deviennent alors pointées et la figure de diffraction peut même devenir un réseau de points dans le cas où la rugosité est du même ordre de grandeur que la taille de cohérence du faisceau – une dizaine de nanomètres. Outre l'évolution du paramètre de maille et la rugosité de surface, la diffraction RHEED permet aussi d'étudier les éventuelles reconstructions de surface grâce aux tiges de sur-structure qui leur sont liées. Cette technique, principalement utilisée lors de la croissance des semi-conducteurs est un bon guide pour connaître les richesses relatives des différents composants de croissance – les reconstructions de surface étant intimement liées à la stœchiométrie lors de la croissance.



**FIGURE II.1:** Exemples de renseignements apportés par des clichés RHEED, clichés pris sur le bâti métaux montrant (a) la reconstruction  $\times 2$  de la surface de GaAs après désorption de l'As amorphe et (b) la surface de MgO après dépôt

### 1.1.2 Bâti de dépôts métaux et oxyde

Le bâti d'épithaxie utilisé pour la réalisation des dépôts de barrières tunnel et électrodes ferromagnétiques – appelé bâti métaux dans la suite – comprend classiquement un sas d'introduction, une chambre de préparation et la chambre d'évaporation schématisé sur la figure II.2. Dans cette chambre, un vide de l'ordre de  $10^{-10}$  à  $10^{-9}$  mbar est assuré par des pompes ioniques et des sublimateurs de Titane, ainsi que par un panneau froid refroidi par azote liquide permettant de piéger les particules polluantes lors des dépôts.



**FIGURE II.2:** Représentation schématique de la chambre d'évaporation du bâti métaux.



Dans ce bâti, l'évaporation des matériaux à déposer se fait par bombardement d'électrons grâce à deux canons à électrons. Un canon est constitué d'un filament dans lequel un courant circule. Une tension de 10 kV est appliquée pour arracher des électrons de ce filament. Le faisceau d'électrons est ensuite dirigé et focalisé par des bobines sur une cible, provoquant l'échauffement puis l'évaporation de celle-ci.

La chambre de dépôt comporte deux canons à électrons pouvant fonctionner simultanément autorisant les codépôts. Chacun permet l'utilisation de quatre creusets, dédiés à l'évaporation de quatre matériaux différents. Deux caches mobiles motorisés permettent de bloquer les flux rapidement, et ainsi d'avoir un contrôle précis de l'épaisseur déposée. Des balances à quartz servent à mesurer et à réguler les flux de matière envoyés par les canons. Elles sont placées de façon à recevoir une partie du flux de matière déposé, le rapport entre le flux reçu par les balances à quartz et l'échantillon a été étalonné. La régulation de la vitesse de dépôt se fait par un système de rétroaction sur les balances à quartz : une augmentation du flux de matière reçu fera diminuer la puissance de fonctionnement du canon à électrons. Pour le dépôt, l'échantillon est placé sur un bras manipulateur situé au centre de la chambre. Le manipulateur est équipé d'un four qui permet de porter les échantillons à des températures allant jusqu'à 1200°C. Il permet notamment de monter en moins de 2 minutes à 500°C, ce qui permet de faire des recuits *flash*.

### 1.1.3 Bâti de dépôts semi-conducteurs

La chambre d'évaporation Arséniure est partie intégrante d'un bâti d'épitaxie dédié aux semi-conducteurs II-VI et III-V. Cette chambre d'évaporation est donc reliée à une très grande chambre de préparation permettant de transférer les échantillons sans remise à l'air jusqu'à d'autres chambres de dépôts. Un sas d'introduction rapide lui-même protégé de l'air ambiant par une boîte à gants permet d'introduire les échantillons.

La chambre d'évaporation de ce bâti est semblable à celle du bâti métaux – panneaux refroidis pour condenser les impuretés pendant le dépôt, système de pompage par pompe ionique et sublimateur de Titane. Une différence mineure étant que la pompe ionique est relayée par un groupe de pompage cryogénique le temps du dépôt.

En revanche le système d'évaporation des cibles est radicalement différent. Les matériaux sont placés dans des creusets situés au sein d'une *cellule de Knudsen*. Une cellule de Knudsen fonctionne par effet Joule, chauffant le creuset qui contient le matériau provoquant son évaporation. Ce bâti contient cinq cellules permettant de réaliser différents composés à base d'Arsenic, une cellule contient du Silicium pour réaliser des couches avec un dopage *n*.

Une autre différence importante entre les bâtis est la méthode utilisée pour mesurer les vitesses de dépôt. Celles-ci ne sont pas mesurées en temps réel par des balances à quartz mais étalonnée par oscillation RHEED. Le principe de la mesure de vitesse par oscillation RHEED est expliqué dans la légende de la figure II.3 page suivante.

## 1.2 Pulvérisation cathodique

Dans la deuxième partie de ce travail de thèse, l'injection de spin dans le Silicium a été étudiée depuis un injecteur Alumine-Cobalt-Platine déposé par pulvérisation cathodique.

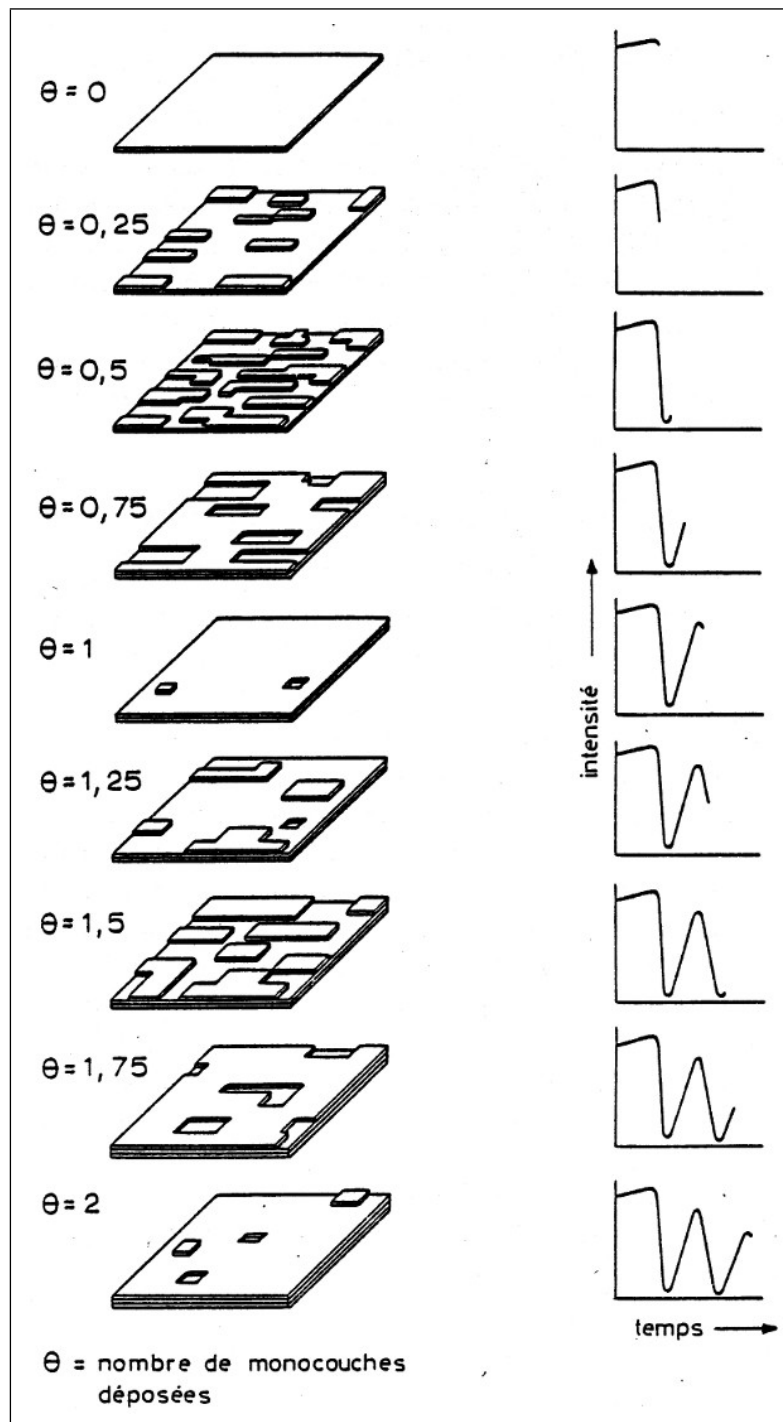
### 1.2.1 Principe du dépôt

La pulvérisation cathodique est un mode d'élaboration de couches minces largement utilisé, aussi bien dans l'industrie que pour la recherche. Le principe consiste à former un plasma à partir d'un gaz inerte – typiquement de l'argon à cause de sa faible réactivité chimique et de son faible coût – dont les ions sont ensuite accélérés entre une anode et une cathode. Lorsque les électrodes servant à amorcer le plasma sont les mêmes que celles qui accélèrent les ions vers la cible, on parle de *pulvérisation cathodique diode*. Le matériau à déposer est placé au niveau de la cathode, une partie de l'énergie cinétique des ions du plasma est transférée aux atomes de la cible qui vont être éjectés et vont se condenser sur le substrat. La vitesse de dépôt va varier avec la pression d'argon injectée dans la chambre et la tension appliquée pour accélérer les ions.

Il existe deux régimes de pulvérisation de la cible, soit en courant continu – mode DC –, soit en courant alternatif radiofréquence – mode RF –. Seul ce dernier mode permet la pulvérisation de matériaux isolants. Un aimant peut être placé derrière la cible pour courber les trajectoires des électrons secondaires émis lors des collisions entre les ions  $\text{Ar}^+$  et les atomes de la cible et limiter le bombardement du substrat. Le champ magnétique créé focalise également le plasma vers la cible, augmentant le taux d'ionisation, donc la vitesse de dépôt et diminuant la contamination de l'échantillon par l'argon. Cette technique est appelée *magnétron*.

### 1.2.2 Description du bâti

Le bâti de dépôt utilisé est un bâti de marque PLASSYS, il est de type diode magnétron. L'effet magnétron est obtenu par la présence à la périphérie de chaque cible de douze aimants en interaction avec un aimant central qui génèrent un champ magnétique avec une composante planaire de 700 Oe. Le bâti comporte une seule



**FIGURE II.3:** Tiré de la thèse de J.M. Gérard [Gérard, 1990]. En épitaxie, la vitesse typique de dépôt est de l'ordre d'une monocouche par seconde. Lorsqu'une monocouche est complète, l'intensité lumineuse de la tache de réflexion spéculaire du RHEED est maximale. Elle est minimale pour une demi monocouche qui présente un grand nombre d'îlots diffusants. Le principe de la mesure est alors le suivant : la croissance est arrêtée pour permettre à la dernière couche de bien se compléter puis le cache est ouvert et les oscillations d'intensité du RHEED sont mesurées. La vitesse peut donc être étalonnée en fonction des températures de cellule et du substrat.

chambre, contenant quatre cibles – deux à flux vertical et deux à flux convergent permettant les codépôts – et une platine tournante composées de neuf porte-échantillons. Un des supports est occupé par une balance à quartz permettant l'étalonnage des vitesses de dépôt des différents matériaux. Chaque cible possède son alimentation régulée en courant, trois sont des alimentations DC et une RF. Le vide est assuré par un groupe de pompage cryogénique permettant un vide limite de quelques  $10^{-8}$  mbar. Les pressions de travail pour la pulvérisation sont comprises entre  $10^{-2}$  mbar et  $10^{-3}$  mbar d'argon.

### 1.3 Dépôt Chimique en phase Vapeur

Les substrats utilisés pour étudier l'injection de spins dans le Silicium – puits de Silicium-germanium ou boîtes de germanium – ont été épitaxiés par Dépôt Chimique en phase Vapeur (CVD). Cette technique sera juste évoquée car aucun dépôt par CVD n'a été réalisé au cours de cette thèse, les substrats provenant soit du CEA/Leti soit de l'Institut d'Electronique fondamentale à Orsay.

La CVD est une méthode dans laquelle le ou les constituants d'une phase gazeuse, appelés *précurseurs*, réagissent pour former un film solide déposé sur un substrat. Les précurseurs du Silicium sont soit le dichlorosilane pur  $\text{SiH}_2\text{Cl}_2$ , soit du silane pur  $\text{SiH}_4$ . Pour le germanium, c'est le Germane  $\text{GeH}_4$  dilué à 2% dans de l' $\text{H}_2$  qui est utilisé. Les précurseurs sont introduits dans une enceinte où sont placés les substrats. Le film est obtenu par réaction chimique entre la phase vapeur et le substrat chauffé.

## 2 Mesures magnétiques

L'élaboration de couches magnétiques pour l'injection de spins étant un des piliers de ce travail de thèse, il convenait de vérifier que leurs propriétés magnétiques étaient bien celles attendues. Pour cela, plusieurs techniques ont été employées : les **mesures par Effet Kerr** pour tracer les cycles d'hystérésis des couches de Cobalt-Platine à température ambiante et le **magnétomètre à SQUID** pour effectuer ces mêmes mesures en fonction de la température. Les couches de Fer-Platine ayant un champ coercitif trop important, les cycles d'hystérésis ont été obtenus grâce au **Magnétomètre à Echantillon Vibrant**. Le **MFM** a été utilisé pour imager les configurations en domaines de telles couches.

### 2.1 Mesures par effet Kerr

Le banc de mesure par effet Kerr est un moyen simple et rapide de tracer des cycles d'hystérésis pour des échantillons magnétiques. Son principal défaut étant

de ne mesurer que des variations relatives d'aimantation et pas l'aimantation absolue des échantillons. Il peut s'utiliser pour mesurer des aimantations perpendiculaire – *Kerr polaire* – ou planaire – *Kerr longitudinal et transverse*. Dans ce paragraphe nous étudierons les mesures Kerr en configuration polaire car c'est la configuration qui a été la plus utilisée. Le signal Kerr polaire étant bien plus important que les signaux Kerr planaires, les mesures d'aimantation sont souvent difficiles à réaliser car il faut un alignement de l'échantillon très rigoureux pour ne pas être sensible au signal polaire.

### 2.1.1 Principe physique

La mesure d'aimantation par effet Kerr utilise l'effet Kerr magnéto-optique. Cet effet est l'analogue en réflexion de l'effet Faraday qui décrit l'interaction de la lumière avec un champ magnétique dans un matériau. L'effet Kerr magnéto-optique se manifeste par la variation de polarisation d'une onde électromagnétique lorsqu'elle se réfléchit sur un milieu aimanté. Un rayon polarisé linéairement se réfléchit en rayon polarisé elliptiquement dont la direction du grand axe de l'ellipse fait un angle  $\theta_k$  avec celle de la polarisation du rayon incident. C'est l'analyse de cette polarisation qui permet de déterminer l'état magnétique du matériau.

L'onde incidente  $\vec{E}_i$  arrivant sur le milieu magnétique est polarisée linéairement. Elle peut donc se décomposer en deux ondes polarisées circulairement gauche et droite de même amplitude.

L'onde incidente se propage dans l'air, milieu d'indice  $n = 1$ . Le milieu magnétique a un indice  $n$  différent de 1. Les équations de Maxwell dans le matériau aimanté permettent de montrer qu'en raison du champ magnétique induit par l'aimantation, l'indice va être différent pour les ondes polarisées circulairement droite –  $n_+$  – et gauche –  $n_-$ . Les coefficients de réflexion pour ce problème, donnés par les équations de Fresnel, varient donc suivant la polarisation de la lumière :

$$r_{\pm} = -\frac{n_{\pm} - 1}{n_{\pm} + 1} \quad (\text{II.2})$$

Le coefficient de réflexion complexe étant différent pour l'onde polarisée circulaire droite et circulaire gauche, les deux signaux réfléchis sont de normes différentes et déphasés l'un par rapport à l'autre. L'onde réfléchie devient polarisée elliptiquement et l'axe principal de cette ellipse tourne d'un angle  $\theta_k$ . L'ellipticité  $\psi_k$  et  $\theta_k$  sont donnés par :

$$\psi_k = -\Re\left(\frac{n_+ - n_-}{n_+ n_- - 1}\right)\theta_k = -\Im\left(\frac{n_+ - n_-}{n_+ n_- - 1}\right) \quad (\text{II.3})$$

La mesure d'une de ces deux grandeurs permet de déterminer les indices optiques pour les ondes polarisées circulairement gauche et droite et ainsi de remonter à l'état magnétique du matériau. Mais cette technique ne sonde l'aimantation que sur l'épaisseur de pénétration du champ électrique dans le matériau magnétique soit l'épaisseur de peau, typiquement de l'ordre de quelques nanomètres. Elle est donc idéale pour mesurer l'aimantation de couches minces et permet de s'affranchir de l'éventuel signal magnétique du substrat.

Il n'est en revanche pas envisageable de connaître précisément la quantité de matériau magnétique sondée par le faisceau laser. Il faudrait pour cela connaître la taille exacte du faisceau et la profondeur à laquelle celui-ci pénètre dans la matière. La mesure de l'aimantation est donc nécessairement une mesure relative.

### 2.1.2 Dispositif expérimental

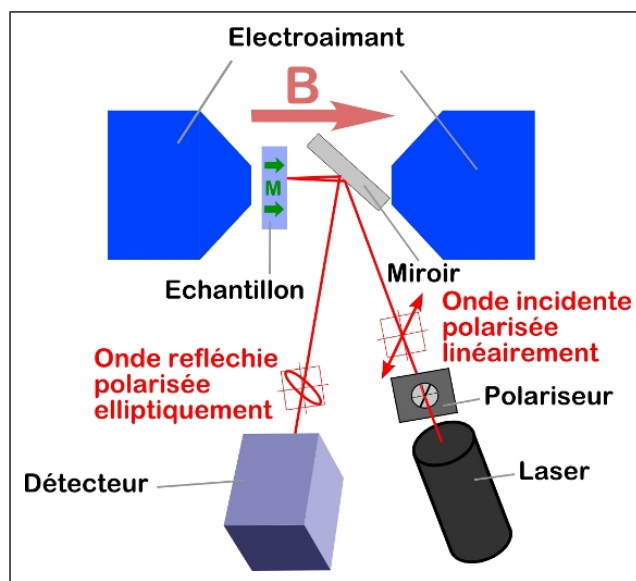
Le banc de mesure est schématisé sur la figure II.4. Un faisceau laser He-Ne de longueur d'onde 632,8 nm couplé à un polariseur permettent d'envoyer via un miroir un faisceau polarisé linéairement sur l'échantillon placé dans l'entrefer d'un électroaimant. En se réfléchissant sur l'échantillon aimanté, le faisceau devient polarisé elliptiquement. Il est renvoyé vers le détecteur qui est constitué d'un *Modulateur Photo-Elastique* (PEM), d'un polariseur puis d'une diode silicium. Le PEM agit comme une lame quart d'onde et associé à un polariseur permet d'analyser les polarisations elliptiques. Le signal reçu par la diode silicium et démodulé via la détection synchrone à la fréquence du PEM est ensuite analysé pour en extraire l'angle de rotation et l'ellipticité, ces deux grandeurs donnant une valeur relative de l'aimantation. L'électroaimant permet d'appliquer des champs allant jusqu'à 0,45 Tesla.

## 2.2 Magnétomètre à Squid

### 2.2.1 Principe physique

Le principe de fonctionnement du magnétomètre à SQUID repose sur l'utilisation de l'effet Josephson qui se caractérise par l'apparition spontanée d'un courant entre deux matériaux supraconducteurs séparés par une couche isolante : la *jonction Josephson*. Le passage de paires de Cooper par effet tunnel dans la jonction Josephson est déterminé par la différence de phase des fonctions d'onde dans chacun des matériaux supraconducteurs. Lorsqu'une tension est appliquée à une jonction Josephson, des oscillations de courant supraconducteur y apparaissent.

Un SQUID consiste essentiellement en une boucle supraconductrice dans laquelle est insérée une ou deux jonctions Josephson. En pratique la jonction Josephson est réalisée grâce à une constriction dans la boucle supraconductrice.



**FIGURE II.4:** Schéma du banc de mesure par effet Kerr polaire. Le détecteur comprend un PEM, un polariseur et une diode silicium. Le champ produit par l'électroaimant est étalonné et mesuré au cours de la mesure par une sonde de Hall

Pour un magnétomètre à SQUID fonctionnant en mode Radio-Fréquence (R.F.), la boucle supraconductrice ne comprend qu'une jonction sur laquelle on applique une tension. Cette tension crée des oscillations des paires de Cooper à travers la jonction Josephson en fonction du déphasage dans les branches de la boucle. Or la phase des fonctions d'onde dépend de manière très sensible du flux magnétique traversant la boucle. En raison du flux magnétique créé par l'échantillon dans la boucle ces oscillations sont perturbées et le supraconducteur réagit en tentant de maintenir le flux magnétique constant.

La boucle supraconductrice est couplée magnétiquement à un circuit bouchon via une bobine radiofréquence qui permet de compenser la variation de flux induit par l'échantillon. La tension mesurée aux bornes de cette boucle de rétroaction permet de déterminer les variations de flux magnétique générées par l'échantillon dans la boucle supraconductrice et ainsi de déterminer son aimantation.

### 2.2.2 Domaines d'application

Les magnétomètres à SQUID sont les détecteurs de champ magnétique les plus sensibles. Pour un SQUID R.F. la sensibilité est limitée par les amplificateurs R.F.. Les magnétomètres à SQUID de l'INAC permettent de mesurer des aimantations

de l'ordre de  $10^{-7}$  emu. Le dispositif expérimental autorise des échantillons de  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  pour des mesures d'aimantation en configuration perpendiculaire, ce qui est suffisant pour mesurer des films minces de Cobalt – dont l'aimantation vaut  $1100 \text{ emu.cm}^{-3}$ .

Les magnétomètres à SQUID sont constitués d'un cryostat à hélium dans lequel est plongé l'échantillon, cryostat permettant de maintenir le régime supraconducteur dans les boucles de détection ainsi que de réaliser des mesures magnétiques en température, d'un écran magnétique supraconducteur permettant de s'affranchir de champs magnétiques parasites et du système de détection : la boucle supraconductrice couplée au circuit bouchon relié à l'électronique de mesure.

## 2.3 Magnétomètre à Echantillon Vibrant

Le principe de fonctionnement d'un magnétomètre à échantillon vibrant (Vibrating Sample Magnetometer : V.S.M.) est analogue à celui d'un SQUID. Il s'agit de détecter la variation de flux magnétique créé par un échantillon aimanté en vibration. Dans le cas d'un VSM, le flux magnétique est détecté grâce aux courants créés dans les bobines de détections

L'échantillon est fixé sur une canne qui vibre verticalement au centre d'un électro-aimant. Quatre bobines de détection placées de part et d'autre de l'échantillon permettent de détecter les variations de flux magnétiques créées par la vibration et ainsi remonter à une valeur absolue de l'aimantation de l'échantillon. Ce moyen de mesure est moins adapté que la mesure par Effet Kerr pour les films magnétiques de faibles épaisseurs mais l'électro-aimant permet de monter à des champs supérieurs au Tesla. Si les mesures sont moins complètes – pas de mesures en température, champ magnétique plus faible – que celles permises par le SQUID, elles sont en revanche beaucoup plus rapides à réaliser.

## 2.4 Microscope à force atomique – Microscope à force magnétique

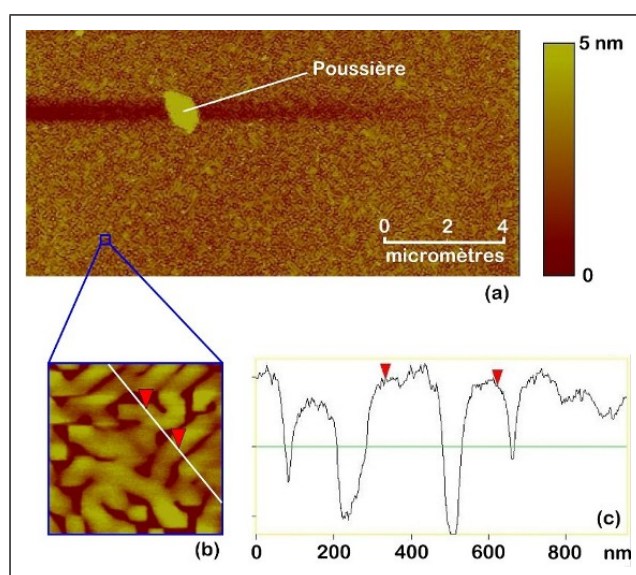
La *Microscopie à Force Magnétique* – Magnetic Force Microscopy : **MF**M – est dérivée de la *Microscopie à Force Atomique* – Atomic Force Microscopy : **AF**M.

### 2.4.1 Microscopie à Force Atomique

L'AFM est une technique de caractérisation qui permet une détermination précise du relief de la surface d'un échantillon. Son principe de fonctionnement consiste à amener une sonde nanométrique – un cône de silicium, d'un rayon de courbure à l'extrémité de l'ordre de 10 nm monté sur un bras de levier appelé *cantilever*



– à proximité de l'échantillon et à lui faire balayer la surface. Pour déterminer la topographie de la surface de l'échantillon, la pointe est déplacée en maintenant constantes les forces s'exerçant entre le cantilever via la pointe et l'échantillon : forces répulsives de contact, attractives de Van der Waals. En cas de rugosité de la surface de l'échantillon, ces forces entraînent la déflexion du cantilever qui est mesurée grâce à la réflexion d'un faisceau laser détectée par des capteurs CCD. En réponse, une boucle de rétroaction et un système de cristaux piezo-électriques permet d'assurer le déplacement de la pointe : verticalement pour maintenir la détection ou l'amplitude de l'oscillation du cantilever constantes, latéralement pour déplacer la pointe au dessus de l'échantillon. L'image de la surface est ainsi formée par une série de lignes de niveau d'interaction cantilever-échantillon constante, laquelle série correspond idéalement à la topographie recherchée convoluée par la forme de la pointe.



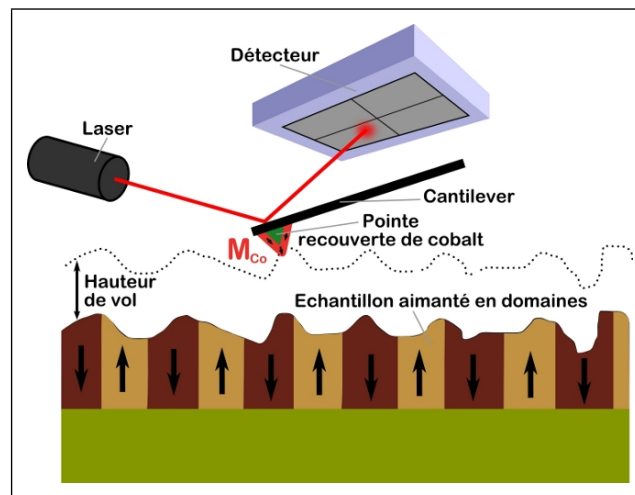
**FIGURE II.5:** Exemples d'images AFM. (a) Image  $10 \times 20 \mu\text{m}$  de la surface d'un substrat contenant un puits de SiGe, zoomée (b) en  $1 \times 1 \mu\text{m}$ . Vue en coupe (c) suivant la ligne blanche de cette image.

Il existe plusieurs modes de fonctionnement pour l'AFM, les deux principaux étant le mode *contact* et le mode *tapping*. Un dernier mode, dit *non-contact* n'est pratiquement pas utilisé. Dans le premier mode, la pointe appuie sur la surface, elle est donc repoussée du fait du principe de Pauli, et le levier est dévié. La rétroaction s'effectue sur la mesure de la direction de la déviation. Dans le mode *tapping*, qui a été celui utilisé pour toutes les mesures d'AFM et de MFM, le cantilever vibre à sa fréquence de résonance mécanique compris entre 60 et 70 kHz. Quand la pointe interagit avec la surface l'amplitude décroît à cause de la variation de sa fréquence

de résonance. La rétroaction se fait alors sur l'amplitude d'oscillation du levier.

### 2.4.2 Microscopie à Force Magnétique

En MFM, la pointe est recouverte d'un film magnétique de cobalt-chrome, cobalt-platine ou autre, ce qui la rend sensible au champ de fuite d'un échantillon magnétique. Deux types de forces s'exercent alors principalement sur la pointe : les forces de Van der Waals – qui décroissent en  $1/r^7$  – et l'interaction entre le champ de fuite et le moment magnétique de la pointe – qui décroît en  $1/r^4$ . Ainsi, au voisinage de la surface, les forces de Van der Waals prédominent. Inversement, la pointe est principalement sensible aux forces magnétiques lorsqu'elle s'éloigne de la surface. Pour séparer ces deux types d'interaction, la surface est balayée deux fois successivement (voir II.6). Le premier balayage, à proximité de la surface, permet de déterminer la topographie de la surface de l'échantillon. Pour son second passage, la pointe suit la topographie de la surface précédemment relevée, à une hauteur de vol de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres où les forces magnétiques sont prépondérantes. La pointe étant sensible aux champs de fuites générés par l'échantillon<sup>1</sup>, elle permet d'imager les domaines magnétiques lorsque l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche et les parois de domaines lorsque l'aimantation est dans le plan.



**FIGURE II.6:** Microscopie à force magnétique : second balayage à hauteur de vol constante. La pointe est sensible au champ de fuite – non représenté – rayonné par l'échantillon.

1. Cette propriété implique que seuls les échantillons présentant une configuration magnétique en domaines peuvent être imagés puisqu'une couche uniformément aimantée ne rayonne pas.

Lors du second balayage, à distance de la surface, les forces magnétiques provoquent un décalage de phase  $\Delta\phi$  dans les oscillations du cantilever, proportionnel au gradient de force vertical dans lequel évolue la pointe :

$$\Delta\phi \propto \vec{\nabla} F_z \quad (\text{II.4})$$

où  $\vec{F}$  est la force agissant sur la pointe plongée dans le champ de fuite de l'échantillon.  $\vec{F}$  est liée à l'énergie d'interaction entre la pointe et l'échantillon  $E_{interaction}$ . Elle peut être exprimée comme la convolution de l'aimantation de la pointe  $\vec{M}_{pointe}$  avec le champ de fuite rayonné par l'échantillon  $\mu_0 \vec{H}_{échantillon}$

$$E_{interaction} = -\mu_0 \int_{pointe} \vec{M}_{pointe} \vec{H}_{échantillon} dr \quad (\text{II.5})$$

Ainsi, l'image MFM correspond à l'image du gradient de force ressenti par la pointe. Suivant le modèle adopté pour la pointe – monopôle, dipôle, ... – l'image obtenue correspond à une cartographie du champ de fuite rayonné par l'échantillon.

Des difficultés pour réaliser des images MFM peuvent se rencontrer dans le cas où les échantillons sont peu magnétiques, le signal – la force échantillon-pointe d'origine magnétique – étant éventuellement trop faible, ou dans le cas d'échantillons trop doux, sur lesquels le champ de fuite de la pointe MFM a un effet notable – déplacement de parois, renversement local de l'aimantation.

### 3 Caractérisation optique

Cette partie présente les dispositifs expérimentaux utilisés pour étudier optiquement les échantillons. Les mesures de **PhotoLuminescence** utilisées pour caractériser les structures semi-conductrices seront brièvement évoquées. Le banc de mesure d'**ElectroLuminescence** qui a servi à étudier l'injection de spins sera plus longuement décrit. Des dispositifs différents ont été utilisés pour l'injection dans les semi-conducteurs III-V et IV-IV. Seuls ces derniers seront décrits, les mesures sur les semi-conducteurs III-V n'ayant pas donné de résultats.

### 3.1 Photoluminescence

La photoluminescence est une technique optique permettant de caractériser les matériaux semi-conducteurs et les isolants. Elle a été utilisée dans le cadre de ce travail pour valider les propriétés de luminescence des puits et boîtes quantiques de GaAs et Ge ou SiGe utilisés pour étudier l'injection de spins. Son principe de fonctionnement est le suivant : des paires électrons-trous sont créés dans le matériau à étudier à l'aide d'un rayonnement – généralement un laser – et la lumière émise par recombinaison de ces paires est détectée puis analysée. De manière générale, l'énergie de la lumière émise est plus faible que celle du rayonnement d'excitation.

L'excitation – ou *pompage* – du silicium se fait à l'aide des raies à 351 et 364 nm d'un laser argon. Le faisceau laser est injecté dans une fibre optique UV grâce à une lentille de focalisation puis focalisé sur l'échantillon en sortie de fibre. L'intensité transmise par la fibre est d'environ 90%. Le système de collection de la luminescence est constitué de deux lentilles. Une première lentille sert à collecter la lumière émise par l'échantillon. L'échantillon étant placé à la focale de cette première lentille, le signal lumineux ressort de cette lentille en faisceau parallèle et une seconde lentille de focalisation permet d'injecter le signal lumineux dans une fibre optique. Entre ces deux lentilles, on peut insérer des filtres afin de stopper le rayonnement UV ainsi que la lumière due à la fluorescence du tube laser qui peuvent être diffusées par l'échantillon dans l'axe du système.

Le système de collection des photons – dispersion spectrale du faisceau incident par un réseau puis collecte dans un photo-multiplicateur InGaAs – est très semblable à celui décrit pour le montage d'électroluminescence décrit au paragraphe b page 40.

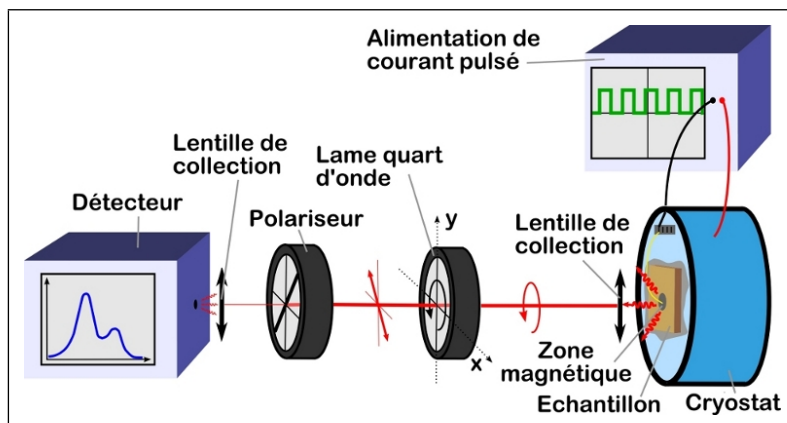
### 3.2 ElectroLuminescence : EL

Le principe d'une mesure d'Electroluminescence consiste à étudier la lumière émise par un échantillon lorsqu'il est excité par un courant électrique. La nature de tels échantillons susceptibles d'électroluminescer sera décrite dans la partie 3 page 142, nous n'aborderons ici que l'instrumentation nécessaire à cette analyse.

#### 3.2.1 Banc de Mesure

Un banc de mesure d'électroluminescence peut se décomposer en deux parties, l'alimentation électrique et le détecteur optique, qui comprend aussi bien le capteur proprement dit que le dispositif servant à analyser la polarisation de la lumière (voir 3.2.2 page 40).

L'échantillon est placé dans un cryostat refroidi à l'Azote ou à l'Hélium liquide, ce qui permet de faire des mesures d'électroluminescence pour des températures variant de 4 K à 300K. Il est contacté en face avant et face arrière, le contact arrière étant assuré par simple collage à la laque d'argent dans un cryostat, celui-ci étant relié à la masse. Un schéma de l'ensemble du banc de mesure est présenté figure II.7 page suivante.



**FIGURE II.7:** Schéma du banc d'Electroluminescence. La lumière émise par l'échantillon est partiellement polarisée circulairement, et devient donc en partie polarisée rectilignement après la lame quart d'onde (voir à page suivante). Elle est ensuite filtrée par un polariseur et l'intensité du signal optique est mesurée par un photo-multiplicateur.

**a Alimentation électrique** Etant donné le faible rendement d'électroluminescence des semi-conducteurs à gap indirect, il est nécessaire d'exciter les échantillons avec un courant pulsé. Cela permet de pouvoir injecter des densités de courant importantes tout en limitant l'échauffement. L'alimentation utilisée a donc été dans un premier temps une source de courant pulsée – alimentation de marque *Keithley*. La fréquence de travail de celle-ci, fixée à 63,7 Hz donne la référence pour l'alimentation de courant et le détecteur. L'inconvénient de travailler avec une source de courant comme celle-ci est la forme des créneaux qu'elle génère. Idéalement il faudrait appliquer des créneaux carrés pour que la luminescence se fasse à caractéristiques courant-tension constantes. L'électronique interne de ces alimentations ne permet pas de réaliser de tels créneaux mais des pulses de courant avec des rampes de montée en courant de pente finie. Lorsque les mesures de polarisation ont été réalisées à l'aide du modulateur photo-élastique, la forme des créneaux est devenue primordiale et l'alimentation a été remplacée par une alimentation spécialement conçue par Jean-François Jacquot du Service de Chimie Inorganique et Biologique.

Le but de cette alimentation est de permettre de délivrer des créneaux de courant carrés. Il faut également que la valeur de consigne de ces créneaux soit ajustable sans avoir à ouvrir le circuit pour ne pas endommager les échantillons lorsqu'on fait varier le courant injecté, ce qui n'était pas le cas avec l'alimentation *Keithley 2400*. Le principe de cette alimentation est simple : elle comprend deux alimentations de courant indépendantes suivies par un commutateur puis un convertisseur tension-courant. La commutation entre les deux sources de tension est très rapide, de l'ordre de 300 nanosecondes, ce qui permet d'avoir des transitions entre les deux valeurs de courant très rapides. Une alimentation de courant classique n'est constituée que d'une seule alimentation de tension programmée entre deux valeurs et d'un convertisseur tension-courant. Le temps de programmation est long et n'autorise donc pas une transition rapide entre les deux valeurs de consigne, d'où l'impossibilité d'obtenir des créneaux carrés. Cette alimentation conçue par Jean-François Jacquot permet donc d'appliquer des créneaux entre deux valeurs de courant réglables à une fréquence de consigne interne ajustable – et dont la valeur peut être envoyée vers une détection synchrone par exemple – en gardant le circuit en fonctionnement. Elle est donc idéale pour notre étude.

**b Détecteur** Le détecteur optique utilisé pour observer l'injection de spins comprend donc un montage optique et un système d'analyse spectroscopique. Le montage optique est constitué d'une lame quart d'onde ou d'un module photo-élastique et d'un polariseur (voir paragraphe 3.2.2) compris entre deux lentilles de collection. Ces lentilles de quelques centimètres de focale permettent de travailler sur la polarisation de la lumière en faisceau parallèle puis de le concentrer entre les fentes du capteur.

La luminescence de l'échantillon est dispersée spectralement par un réseau de 900 traits/mm blazé à 1500 nm, puis captée par un photo-multiplicateur InGaAs refroidi à -61.2°C. Le photo-multiplicateur fonctionne de 950 nm à 1700 nm, sa focale est de 320 mm et sa résolution spectrale<sup>2</sup>  $\Delta\lambda = 6,9$  nm.

### 3.2.2 Optique géométrique

Le but de ce montage optique est d'analyser la polarisation de la lumière émise par l'échantillon. Le transfert du moment de spin de l'électron au photon implique que, si le courant injecté est polarisé, la lumière émise aura une polarisation circulaire (voir la partie 1.3 page 124 sur les règles de sélection dipolaire). Il convient donc de réaliser un montage optique permettant d'analyser la polarisation circulaire d'un échantillon. Le montage le plus simple pour cela est d'associer une lame

---

2. La résolution spectrale d'un photo-multiplicateur est définie par  $\Delta\lambda = \frac{\Sigma_{fentes}}{Nf}$  ou  $\Sigma_{fentes}$  est l'ouverture des fentes – 2 mm pour la plupart des spectres –  $N$  la fréquence spatiale du réseau et  $f$  la focale du photo-multiplicateur.

quart d'onde à un polariseur. Afin d'optimiser la précision de la mesure, la lame quart d'onde a ensuite été remplacée par un modulateur photo-élastique.

**a Montage avec une Lame Quart d'Onde** De part ses propriétés optiques une lame quart d'onde ou lame à retard  $\lambda/4$  peut transformer une onde polarisée circulairement en onde polarisée rectilignement. Une lame retard est un cristal biréfringent possédant deux axes propres orthogonaux, un *axe rapide* et un *axe lent*. Une onde polarisée linéairement le long de l'axe lent est retardé d'un quart de longueur d'onde par rapport à une onde polarisée le long de l'axe rapide en traversant le cristal. Cette propriété n'est évidemment valable que pour une longueur d'onde précise associée à la lame quart d'onde. En faisant varier l'indice optique de la lame en fonction de la longueur d'onde, il est possible de maintenir la propriété de la lame sur une plage de longueur d'onde de quelques dizaines de nanomètres.

Appelons  $x$  l'axe rapide de la lame quart d'onde et  $y$  son axe lent. Une onde incidente polarisée circulaire gauche  $\sigma^+$  se propageant le long des  $z$  croissants peut se décomposer sur cette base comme deux ondes polarisées linéairement déphasées de  $\pi/2$  :

$$\vec{E}_{incident} = \vec{E}_{\sigma^+} = \begin{vmatrix} E_0 \cos(\omega t) \\ -E_0 \sin(\omega t) \end{vmatrix} \quad (\text{II.6})$$

La lame quart d'onde retarde le faisceau de  $\lambda/4$  suivant l'axe  $y$ , c'est-à-dire qu'elle crée un déphasage de  $\pi/2$  entre les deux axes. En sortie de lame, l'onde devient donc polarisée rectilignement dans la direction  $\vec{x} + \vec{y}$  :

$$\vec{E}_{sortie} = \vec{E}_{x+y} = \begin{vmatrix} E_0 \cos(\omega t) \\ -E_0 \sin(\omega t - \pi/2) \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} E_0 \cos(\omega t) \\ E_0 \cos(\omega t) \end{vmatrix} \quad (\text{II.7})$$

Une onde polarisée circulaire droite  $\sigma^-$  représentée par :

$$\vec{E}_{\sigma^-} = \begin{vmatrix} E_0 \cos(\omega t) \\ E_0 \sin(\omega t) \end{vmatrix} \quad (\text{II.8})$$

est transformée par la lame quart d'onde en :

$$\vec{E}_{x-y} = \begin{vmatrix} E_0 \cos(\omega t) \\ -E_0 \sin(\omega t - \pi/2) \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} E_0 \cos(\omega t) \\ -E_0 \cos(\omega t) \end{vmatrix} \quad (\text{II.9})$$

qui est une onde polarisée rectilignement dans la direction  $\vec{x} - \vec{y}$ .

Après passage dans une lame  $\lambda/4$ , les ondes polarisées circulairement gauche et droite deviennent donc polarisées rectilignement orthogonalement. En plaçant

un polariseur derrière la lame, on peut sélectionner une des deux polarisations circulaires et couper l'autre. Il faut pour cela savoir placer l'axe du polariseur à  $45^\circ$  des axes propres de la lame quart d'onde. Pour trouver cette position, il suffit de chercher un des axes propres de la lame retard en retrouvant l'extinction d'un signal non polarisé lorsque celle-ci est placée entre deux polariseurs croisés, puis de la tourner de  $45^\circ$ .

Pour obtenir la polarisation du signal optique défini par  $\mathcal{P}_{optique} = \frac{I_{\sigma+} - I_{\sigma-}}{I_{\sigma+} + I_{\sigma-}}$ , il faut savoir mesurer les intensités des signaux pour les deux polarisations. Il n'est pas possible de changer l'axe du polariseur car la détection par le PM via le réseau peut dépendre de la polarisation du signal incident. La solution utilisée est alors de laisser le polariseur fixe et de faire tourner la lame quart d'onde de  $90^\circ$  pour mesurer l'intensité liée à chaque polarisation. Il y a en effet inversion des axes  $x$  et  $y$ , ce qui revient au même que de bouger le polariseur.

**b Modulateur Photo-Elastique : PEM** Afin d'améliorer la précision de mesure de la polarisation du signal, le montage a été modifié, en remplaçant la lame quart d'onde par un modulateur photo-élastique. Un PEM est un cristal sur lequel est soudé un matériau piezo-électrique. En raison des contraintes appliquées sur le cristal, l'indice de celui-ci varie et permet de déphaser l'onde incidente de la valeur souhaitée. En réglant cette valeur sur  $\pi/2$ , le PEM agit comme une lame quart d'onde mais permet une analyse en polarisation à la fréquence de travail utilisée par le piézo-électrique, soit 20 kHz pour ce montage.



## Chapitre III

# L'injecteur

### Sommaire

---

<b>1</b>	<b>Obtention d'une source de courant polarisé . . . . .</b>	<b>44</b>
1.1	Orientation de l'aimantation dans les couches minces magnétiques . . . . .	44
1.2	Polarisation du courant et transport tunnel . . . . .	50
1.3	Injection à travers une barrière tunnel. . . . .	58
<b>2</b>	<b>FePt-MgO pour l'injection dans le GaAs . . . . .</b>	<b>66</b>
2.1	Croissance par Epitaxie par Jets Moléculaires . . . . .	66
2.2	Propriétés d'injection . . . . .	75
<b>3</b>	<b>CoPt-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pour l'injection dans le silicium . . . . .</b>	<b>84</b>
3.1	Croissance par Pulvérisation Cathodique . . . . .	85
3.2	Propriétés d'injection . . . . .	97
3.3	Autres injecteurs testés . . . . .	109
<b>4</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>111</b>

---

Ce manuscrit traite de l'injection de courant polarisé en spin dans les semi-conducteurs depuis une électrode ferromagnétique. Il a fallu pour cela créer des *injecteurs* de spins, c'est à dire des sources de courant polarisé en spin *adaptées* pour les semi-conducteurs étudiés. Ce chapitre détaille les difficultés théoriques liées à l'injection de spin depuis une électrode métallique, en particulier sur les conditions d'injection qui imposent que les injecteurs soient constitués d'une électrode ferromagnétique et d'une barrière tunnel. Les différents types d'injecteurs utilisés pour l'arséniure de gallium et le silicium sont ensuite présentés, tant du point de vue de l'élaboration que des propriétés magnétiques.

## 1 Obtention d’une source de courant polarisé

L’étude de l’injection de spin dans les semi-conducteurs touche à de nombreux domaines de la physique du solide : le magnétisme, les phénomènes de transport tunnel, la physique des semi-conducteurs, . . . . Afin d’aider le lecteur dans la compréhension des phénomènes observés, un point sera fait au début de chaque chapitre sur les difficultés théoriques qu’ils soulèveront.

Dans l’ensemble de cette étude, les structures utilisées pour créer un courant polarisé et injecter des spins dans les semi-conducteurs sont toutes composées d’une couche magnétique mince à aimantation perpendiculaire et d’une barrière tunnel. Cette première partie de chapitre propose un rapide bilan sur l’orientation de l’aimantation dans les films minces ferromagnétiques – la raison pour laquelle l’aimantation doit être perpendiculaire concerne les conditions de détection des spins injectés et sera traitée dans le chapitre IV page 113 – et sur le transport dans ces matériaux. La nécessité d’injecter le courant polarisé à travers une barrière tunnel sera explicitée après un rappel sur le transport dans les jonctions tunnel magnétiques.

### 1.1 Orientation de l’aimantation dans les couches minces magnétiques

Le but de ce travail de thèse est d’étudier l’injection de spins dans des semi-conducteurs en s’affranchissant d’un champ magnétique. L’utilisation d’électrodes ferromagnétiques métalliques semble un choix naturel pour réaliser cette injection, mais comme il sera montré dans le chapitre IV page 113, la détection optique nécessite que l’orientation des spins injectés soit perpendiculaire au plan de croissance des échantillons et donc que les couches magnétiques utilisées aient une aimantation rémanente perpendiculaire. Un des objectifs de ce travail aura été de réaliser des croissances de films minces à aimantation rémanente perpendiculaire ; cette partie tâche d’expliquer comment s’oriente l’aimantation d’une couche mince ferromagnétique.

#### 1.1.1 Direction d’aimantation : généralités

L’établissement de la direction de l’aimantation dans un matériau est un problème de minimisation d’énergie. En effet, lorsqu’un matériau possède une aimantation non nulle, celle-ci va interagir avec le champ magnétique démagnétisant qu’elle crée ainsi qu’avec le réseau ou la structure du matériau. Suivant la forme et la nature des échantillons magnétiques, différents termes d’énergie vont apparaître et la configuration magnétique minimisant l’énergie magnétique totale va être adoptée. Lorsque l’aimantation est dans un état saturé, c’est l’énergie d’anisotropie magnétique qui va déterminer la direction de l’aimantation.

Les termes contribuant à cette énergie ont diverses origines. La forme de l'échantillon joue toujours un rôle important à cause de l'*énergie de champ démagnétisant* qu'elle génère. La structure cristallographique peut apporter un terme d'*énergie magnétocristalline* éventuellement corrigée de l'*énergie magnétoélastique* lorsque le cristal est contraint. L'énergie magnétocristalline peut provenir de termes de volume liés aux symétries propres du cristal ou d'une *énergie d'interface* lorsque la symétrie du cristal est rompue – multicouches, hybridation des orbitales d'interfaces. L'*énergie Zeeman* représente l'interaction de l'aimantation avec un champ magnétique extérieur, elle ne sera que mentionnée rapidement ici puisque l'étude se fait à champ nul.

L'énergie d'anisotropie magnétique totale peut donc se définir comme :

$$E_{\text{Anisotropie magnétique}} = E_{\text{Champ démagnétisant}} + E_{\text{Magnétocristalline}} + E_{\text{Zeeman}} \quad (\text{III.1})$$

avec

$$E_{\text{Magnétocristalline}} = E_{\text{Magnétocristalline volumique}} + E_{\text{Interface}} + E_{\text{Magnétoélastique}} \quad (\text{III.2})$$

Dans le cas de films minces, l'énergie de champ démagnétisant (voir 1.1.2) est toujours importante et tend à coucher l'aimantation dans le plan de la couche. Pour contrer cet effet, il faut qu'un terme d'énergie plus grand impose l'aimantation hors du plan. Ce terme vient de l'énergie magnétocristalline de volume dans le cas des couches de fer-platine chimiquement ordonnées (voir 1.1.3 page suivante), de l'énergie magnétocristalline d'interface pour les multicouches de cobalt-platine (voir 1.1.4 page 47) et pour les couches de cobalt-platine recuites sur alumine (voir 1.1.5 page 49). Dans la suite nous négligerons l'énergie magnétoélastique.

### 1.1.2 L'énergie magnétostatique

L'énergie de champ démagnétisant est liée au couplage entre l'aimantation du matériau et le champ démagnétisant – le champ démagnétisant est le champ dipolaire à portée infinie – qu'elle crée à l'intérieur de celui-ci. Le calcul du champ créé par l'aimantation de la couche permet d'évaluer cette énergie. Le champ magnétique créé par une distribution d'aimantation est donné par  $\text{div} \vec{H} = -\text{div} \vec{M}$ . En traitant le problème sous la forme de charges magnétiques et par analogie avec les problèmes d'électrostatique, il est possible de montrer<sup>1</sup> que le champ magnétique dans un échantillon uniformément aimanté est créé uniquement par les densités surfaciques de charges magnétiques sur les interfaces. Les surfaces *chargées magnétiquement* sont celles pour lesquelles l'aimantation est normale au plan, les

1. Le lecteur souhaitant approfondir ce point se référera par exemple à l'ouvrage *Magnétisme, partie I : Fondements* [Tremolet de Lacheisserie, 1999] p.42.

densités surfaciques de charges étant définies par  $\sigma_m = \vec{M} \cdot \vec{n}$  ou  $\vec{n}$  est le vecteur normal au plan dirigé vers l'extérieur. L'intensité de ce champ augmente lorsque la distance entre les interfaces diminue.

Il apparaît donc que pour une couche mince infinie à aimantation planaire, il n'y a pas de champ démagnétisant et l'énergie qui lui est associée est nulle. En revanche lorsque l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche, cela introduit deux interfaces *chargées magnétiquement* proches l'une de l'autre et ainsi le champ démagnétisant créé est important.

Il est possible de montrer que pour une couche mince infinie à aimantation perpendiculaire, ce champ vaut :  $\vec{H}_D = -\vec{M}_S$  où  $\vec{M}_S$  est l'aimantation de la couche à saturation. Plus généralement, l'énergie de champ démagnétisant pour une couche mince infinie vaut  $E_D = \frac{1}{2}\mu_0 M_S^2 \cos^2 \theta$  avec  $\theta$  l'angle entre la direction de l'aimantation et la normale au plan de la couche. On retrouve bien que l'énergie de champ démagnétisant est nulle lorsque  $\theta = 90^\circ$ .

En conclusion, l'aimantation d'une couche mince magnétique tend à être planaire car c'est énergétiquement favorable. Pour que l'aimantation devienne perpendiculaire, il doit exister un autre terme qui rende la direction d'aimantation perpendiculaire énergétiquement favorable. Il peut s'agir de l'énergie magnétocristalline de volume ou d'interface.

### 1.1.3 Anisotropie magnétocristalline : le cas du FePt

Dans un matériau magnétique cristallin, la direction de l'aimantation est fortement influencée par les directions de symétrie du réseau. L'origine microscopique d'un tel phénomène vient résulter du champ cristallin et du couplage spin-orbite. Le champ cristallin agit sur la partie orbitale puis sur le moment de spin via le couplage spin-orbite. L'énergie magnétique associée à l'anisotropie magnétocristalline peut être très importante. Elle est responsable de la direction d'aimantation pour les couches épitaxiées de fer-platine dans la structure  $L1_0$ . Cette structure, décrite au paragraphe b page 67, possède la symétrie tétragonale. La symétrie tétragonale est semblable à la symétrie cubique mais avec une brisure de symétrie liée à la mise en ordre chimique. L'axe de facile aimantation est suivant l'axe de la mise en ordre chimique.

**a Anisotropie magnétocristalline en symétrie quadratique** Lorsque la symétrie d'un matériau est cubique, les trois axes cristallographiques sont axes de facile aimantation. Si cette symétrie est brisée et devient uniaxiale, seul l'axe d'anisotropie devient axe de facile aimantation. La densité d'énergie magnétocristalline en symétrie quadratique s'écrit, en se limitant aux premiers termes, comme :

$$e_{MC} = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4(\theta) + \dots \quad (\text{III.3})$$

ou  $\theta$  est l'angle entre la direction de l'aimantation et l'axe de haute symétrie,  $K_1$  et  $K_2$  des constantes d'anisotropie qui dépendent de la température. Dans la plupart des matériaux à symétrie uniaxiale, il est même possible de se restreindre au premier terme du développement, ce qui est le cas pour les couches de FePt. Si la constante d'anisotropie uniaxiale  $K_1$  est négative, l'anisotropie tend à renforcer l'aimantation dans le plan de la couche, si elle est positive, elle tend à la rendre perpendiculaire.

**b Énergie magnétique** La densité d'énergie magnétique pour une couche mince de symétrie quadratique en l'absence de champ magnétique peut donc s'écrire :

$$e_{mg} = K_1 \sin^2(\theta) + \frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 \cos^2 \theta \quad (\text{III.4})$$

soit

$$e_{mg} = \frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 (1 - \sin^2(\theta)(1 - Q)) \quad (\text{III.5})$$

ou  $Q = \frac{2K_1}{\mu_0 M_S^2}$  est le facteur de qualité du matériau. Il traduit la compétition entre l'énergie de champ démagnétisant et l'énergie d'anisotropie magnétocristalline :

- si  $Q < 1$ , l'énergie magnétique est minimale pour  $\theta = 90^\circ$ . L'énergie de champ démagnétisant domine l'énergie d'anisotropie magnétocristalline, l'aimantation reste couchée dans le plan.
- si  $Q > 1$ , l'énergie magnétique est minimale pour  $\theta = 0^\circ$ . L'aimantation devient donc perpendiculaire.

**c Le fer-platine en structure  $L1_0$**  Nous verrons au paragraphe b page 67 que la croissance des couches magnétiques de FePt se fait dans la structure  $L1_0$ . Cette mise en ordre chimique brise la symétrie cubique qui devient quadratique. L'axe [001] devient axe de facile aimantation. Les valeurs de l'aimantation et de la constante d'anisotropie uniaxiale peuvent se déterminer expérimentalement [Weller, 1999].

Pour le fer-platine dans la structure  $L1_0$ , l'aimantation à saturation à température ambiante vaut  $M_S = 1140.10^3 \text{ A.m}^{-1}$  et la constante d'anisotropie uniaxiale  $K_1$  est estimée entre  $6,6.10^6$  et  $10.10^6 \text{ J.m}^{-3}$ . Le facteur de qualité  $Q$  d'un tel matériau est donc compris entre 8,1 et 12. L'aimantation des couches de fer-platine est donc bien perpendiculaire comme le montrent les mesures réalisées dans la section 2 page 66.

### 1.1.4 L'énergie d'interface : les multicouches CoPt

Dans la partie 1.1.3 page précédente l'anisotropie magnétocristalline est utilisée pour obtenir une couche à aimantation perpendiculaire. Mais une telle mise en ordre chimique est difficile à obtenir et nécessite une croissance épitaxiale. Le

changement de sujet d'étude a nécessité le développement – rapide – d'un nouveau type d'injecteur sur silicium. La croissance de couches chimiquement ordonnées étant trop longue à mettre en place, il a fallu trouver d'autres solutions pour obtenir une anisotropie magnétique perpendiculaire en utilisant la croissance par pulvérisation cathodique. Une solution pour créer de l'anisotropie perpendiculairement au plan de la couche d'utiliser l'anisotropie d'interface qui brise la symétrie du cristal : en créant plusieurs interfaces comme dans les multicouches de cobalt-platine ou en modifiant les interfaces par recuit.

**a Généralités** Les multicouches de cobalt-platine à aimantation perpendiculaire ont été longuement étudiées depuis une vingtaine d'années, en particulier au sein du laboratoire grâce aux travaux de thèse de S. Landis [Landis, 2001] et J. Moritz [Moritz, 2003]. La structure de telles multicouches est bien connue. Celles qui donneraient les meilleures propriétés magnétiques pour étudier l'injection de spin – à savoir une aimantation perpendiculaire 100% rémanente, un champ coercitif et un champ de saturation relativement faible – sont les structures de quatre bicouches cobalt-platine sur une couche tampon de platine. Les épaisseurs de cobalt et de platine sont respectivement de 0,5 nm et 1,8 nm. L'étude de l'injection de spins depuis de telles structures n'a pas donné de résultats à cause du buffer de platine qui dépolarise les spins avant l'injection.

Mais ce buffer est indispensable pour maintenir les propriétés magnétiques de cet empilement, l'aimantation n'étant perpendiculaire que si le cobalt a une texture [111], ce qui n'est pas le cas si sa croissance débute directement sur une barrière d'alumine amorphe.

**b Structure et anisotropie magnétique** La croissance d'un buffer de platine sur une couche amorphe – une barrière isolante d'alumine dans notre cas – se fait de manière texturée dans la direction [111]. Cette orientation est d'autant plus marquée que l'épaisseur du buffer est importante. Sur une telle orientation le cobalt croît dans la structure hexagonale compacte, structure dont l'anisotropie implique que l'axe  $c$  est axe de facile aimantation. L'énergie d'anisotropie magnétocristalline s'écrit de la même manière au premier ordre que pour la symétrie tétragonale. Or pour une telle structure on trouve une valeur de  $K_1 = 5,3 \cdot 10^5 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$  et le cobalt a une aimantation  $M_S = 1370 \cdot 10^3 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$ . Le facteur de qualité vaut donc :  $Q = 0,45$ . L'énergie d'anisotropie magnétocristalline n'est donc pas suffisante pour redresser l'aimantation des multicouches de cobalt-platine et il faut donc prendre en compte l'anisotropie apportée par la présence de l'interface Co/Pt pour expliquer la direction de l'aimantation.

Chappert *et al.* [Chappert, 1988] ont montré dans des couches de cobalt prises en sandwich entre deux couches d'or qu'une *anisotropie magnétocristalline de surface* était engendrée par une brisure locale de symétrie aux interfaces du métal

ferromagnétique. La densité d'énergie liée à cette anisotropie de surface qu'il faut rajouter dans le calcul de l'énergie magnétique totale est définie par :

$$e_{Surface} = 2K_S \frac{\sin^2 \theta}{e} \quad (III.6)$$

où  $\theta$  est l'angle entre l'aimantation et la normale au plan du film,  $e$  est l'épaisseur de la couche magnétique et  $K_S$  la constante d'anisotropie surfacique dont la valeur trouvée dans la littérature varie entre  $1,0.10^{-4} \text{ J.m}^{-2}$  et  $6,3.10^{-4} \text{ J.m}^{-2}$ . Cette constante déterminée expérimentalement dépend beaucoup de la qualité des interfaces.

En négligeant l'énergie magnétoélastique comme proposé par Zhang *et al.* [Zhang, 1993], on trouve une densité d'énergie magnétique pour ces multicouches de :

$$e_{mg} = K_1 \sin^2 \theta + 4 \times 2K_S \frac{\sin^2 \theta}{e} + \frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 \cos^2 \theta \quad (III.7)$$

L'application numérique pour une répétition de quatre bicouches de *Co* (0,5 nm)/*Pt* (1,8 nm) donne

$$\text{Pour } \theta = 0^\circ, \quad e_{mg} = \frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 = 1,18.10^6 \text{ J.m}^{-3} \quad (III.8)$$

$$\text{Pour } \theta = 90^\circ, \quad e_{mg} = K_1 + 4 \times 2 \frac{K_S}{e} \approx 3.10^6 \text{ J.m}^{-3} \quad (III.9)$$

Ce calcul rapide – l'énergie magnétoélastique n'est pas forcément négligeable, la valeur de  $K_S$  est mal définie – permet de montrer que la configuration perpendiculaire est énergétiquement favorable si l'on tient compte des anisotropies de surface.

### 1.1.5 L'hybridation des orbitales d'interface : les couches de CoPt recuites

L'étude de l'injection de spin dans le silicium nécessite donc de réaliser une couche magnétique à aimantation perpendiculaire, couche réalisée par pulvérisation cathodique directement sur une barrière d'alumine amorphe. La solution utilisée pour réaliser un injecteur répondant à ces critères est basée sur le travail de Nistor *et al.* [Nistor, 2009], il s'agit de déposer une couche de cobalt puis une couche de platine sur alumine et de recuire l'échantillon. Les caractéristiques physiques d'une telle couche seront développées dans la partie 3 page 84.

**a Origine de l'anisotropie** Avant recuit, un film de cobalt d'une épaisseur de 1,6 nm sur lequel est déposé une couche de platine est à aimantation planaire. L'énergie d'anisotropie apportée par une interface n'est pas suffisante pour contrebalancer l'énergie de champ démagnétisant. Mais après recuit l'aimantation devient perpendiculaire. Bien qu'un alliage de cobalt-platine se forme sur la totalité de la couche, il n'est pas responsable de l'anisotropie, la structure cristallographique étant cubique mais sans ordre chimique particulier.

L'interprétation donnée par Rodmacq *et al.* [Rodmacq, 2009] de cette variation de la direction d'aimantation après recuit vient de l'oxydation du cobalt et du couplage des orbitales de l'oxygène avec celles du cobalt. Les orbitales  $3d_{z^2}$  du cobalt s'hybrident avec les orbitales  $2p$  de l'oxygène. Cette hybridation diminue l'énergie des liaisons cobalt-oxygène perpendiculairement à l'interface, qui possèdent alors une énergie bien inférieure à celle dans le plan. La différence d'énergie  $\Delta$  [Bruno, 1989] entre ces deux types d'orbitales crée une forte anisotropie magnétique perpendiculaire, cette anisotropie est exacerbée par le couplage spin-orbite apporté par le platine. Les valeurs des champs d'anisotropie pour de telles couches seront vues dans la partie 3 page 84.

## 1.2 Polarisation du courant et transport tunnel

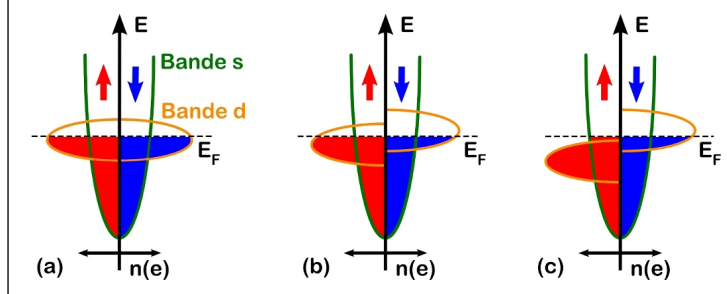
### 1.2.1 Polarisation du courant dans un métal ferromagnétique

**a Magnétisme localisé et magnétisme itinérant** Le ferromagnétisme est une propriété de la matière qui peut avoir des origines très diverses ; il existe donc plusieurs types de matériaux ferromagnétiques. Les *terres rares* – le néodyme, le samarium par exemple – présentent un magnétisme *localisé* porté par la couche  $4f$  des atomes, couche de très faible extension spatiale. Les moments magnétiques sont donc localisés sur les atomes et les électrons responsables du magnétisme interagissent peu avec les électrons de conduction. Dans les matériaux magnétiques dilués – GaMnAs – le ferromagnétisme ou antiferromagnétisme est assuré par l'interaction RKKY – Ruderman Kittel Kasuya Yoshida – qui couple les sites magnétiques via les trous de conduction. Enfin, certains *métaux de transition* – fer, cobalt, nickel – sont ferromagnétiques, le magnétisme étant porté par des électrons délocalisés sur l'ensemble du cristal. On parle alors de magnétisme *itinérant*, c'est ce type de matériaux qui est utilisé et décrit dans la suite. Ces métaux ferromagnétiques sont constitués d'atomes de la fin de la série  $3d$  du tableau périodique des éléments – Fe  $4s^2 3d^6$ , Co  $4s^2 3d^7$ , Ni  $4s^2 3d^8$  –, le remplissage inachevé de cette couche étant responsable des propriétés magnétiques.

Dans les métaux, le transport est assuré par les électrons des couches externes –  $4s$  et  $3d$  – qui sont délocalisées sur l'ensemble du solide. La répartition en énergie des états électroniques occupés peut être schématisée par des bandes paraboliques



larges. Les bandes  $d$  sont décalées en énergie lorsque le matériau est ferromagnétique, les populations de spins  $\uparrow$  et  $\downarrow$  ne sont alors pas égales (voir figure III.1).



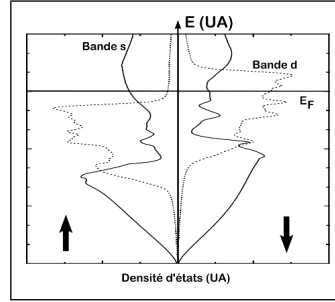
**FIGURE III.1:** Représentation schématique de la structure de bande de conduction – couches 4s et 3d – dans un métal.  $E_F$  est l'énergie de Fermi, ce sont les électrons au niveau de Fermi qui portent le courant électrique. **(a)** Métal non ferromagnétique : il n'y a pas décalage des bandes de spins  $\uparrow$  et  $\downarrow$ . Le courant porté par les bandes  $d$  et  $s$  n'est pas polarisé. **(b)** Métal ferromagnétique faible : le décalage en énergie des bandes  $d$  est faible, le niveau de Fermi coupe les deux sous-bandes mais  $n_{\uparrow}(E) \neq n_{\downarrow}(E)$ . Le courant est véhiculé par les électrons  $s$ ,  $d_{\uparrow}$  et  $d_{\downarrow}$ . **(c)** Métal ferromagnétique fort : le décalage en énergie des bandes  $d$  est important, le niveau de Fermi ne coupe que la sous-bande minoritaire  $d_{\downarrow}$ . Le courant est véhiculé par les électrons  $s$  et  $d_{\downarrow}$ .

**b Polarisation en spin du courant** Dans le modèle simple présenté figure III.1, l'asymétrie des densités d'état va entraîner une asymétrie des propriétés de transport dans les métaux ferromagnétiques. Celui-ci a été modélisé par Mott en 1964 [Mott, 1964] comme la mise en parallèle de deux canaux de spins de conductivités différentes  $\sigma_{\uparrow}$  et  $\sigma_{\downarrow}$ , proportionnelles aux densités d'états au niveau de Fermi  $n_{\uparrow}(E_F)$  et  $n_{\downarrow}(E_F)$ . La *polarisation en spin* du courant peut alors être définie par :

$$\mathcal{P}_{spin} = \frac{n_{\uparrow}(E_F) - n_{\downarrow}(E_F)}{n_{\uparrow}(E_F) + n_{\downarrow}(E_F)} \quad (\text{III.10})$$

Cette définition simple de la polarisation n'est pas toujours suffisante et dépend du moyen choisi pour la mesurer. Dans ce modèle par exemple, un métal ferromagnétique fort posséderait comme seuls porteurs polarisés en spin les porteurs minoritaires  $d_{\downarrow}$ . Il devrait avoir une polarisation en spin *négative*, ce qui est en contradiction avec les observations réalisées par Tedrow *et al.* [Tedrow, 1973] sur des systèmes  $FM/Al_2O_3/Al_{supraconducteur}$  à 0,4 K –  $\mathcal{P}_{cobalt} = +34\%$  et  $\mathcal{P}_{nickel} = +11\%$ . Hertz *et al.* [Hertz, 1973] ont expliqué ce phénomène par une hybridation

des orbitales  $s$  et  $d$ , les électrons de la bande  $s$  se polarisent en spin sous l'effet de l'aimantation des bande  $d$ . La figure III.2 montre que pour le cobalt – métal ferromagnétique fort – la densité d'états totale au niveau de Fermi est bien plus importante pour les spins minoritaires mais en revanche les bandes  $s$  sont décalées à cause de la polarisation due aux bandes  $d$  et  $n_{s\downarrow}(E_F) \neq n_{s\uparrow}(E_F)$ .



**FIGURE III.2:** D'après [Tsymbal, 1997]. Diagramme des densités d'états électroniques du cobalt. La courbe en pointillée représente la densité d'états totale tandis que celle en trait plein ne concerne uniquement la bande  $s$ . Les échelles de densité d'états ne sont pas les mêmes pour les deux courbes.

L'asymétrie des densités d'états des bandes  $s$  et  $d$  au niveau de Fermi ainsi que leurs contributions différentes au transport – les électrons  $s$  sont plus légers donc plus mobiles – ont conduit Mazin [Mazin, 1999] à donner une définition différente de la polarisation dans le cas où celle-ci est mesurée à partir de l'injection d'un courant depuis un métal ferromagnétique :

$$P_{spin} = \frac{\sum \langle n_{i,\uparrow}(E_F) \cdot v_i(E_F) \rangle - \sum \langle n_{i,\downarrow}(E_F) \cdot v_i(E_F) \rangle}{\sum \langle n_{i,\uparrow}(E_F) \cdot v_i(E_F) \rangle + \sum \langle n_{i,\downarrow}(E_F) \cdot v_i(E_F) \rangle} \text{ avec } i = s, d \quad (\text{III.11})$$

La polarisation du courant n'est pas fonction d'une densité d'états totale au niveau de Fermi mais une moyenne des différentes bandes de densités d'états spécifiques pondérée par leurs vitesses de Fermi. A noter que dans le cas de l'injection à travers une barrière tunnel, l'hybridation des orbitales de l'électrode ferromagnétique avec celles de la barrière entraîne que les électrons  $s$  et  $d$  participent plus ou moins au transport. Suivant la nature des liaisons ces participations relatives varient fortement ce qui va déterminer l'amplitude et le signe de la polarisation de l'électrode.

Dans la suite de ce manuscrit et sauf précision supplémentaire la *polarisation du courant* sera celle définie par l'équation III.10 page précédente.

### 1.2.2 Jonctions tunnel magnétiques

L'étude de la magnéto-résistance tunnel n'est pas directement liée au sujet de ce manuscrit mais les avancées dans ce domaine ont permis de comprendre certaines

subtilités du transport polarisé en spin – notions nécessaires pour comprendre l'injection de spins dans les semi-conducteurs. Un rapide point sera fait ici pour ensuite se focaliser sur l'injection de courant polarisé depuis un couple *métal ferromagnétique / barrière tunnel*.

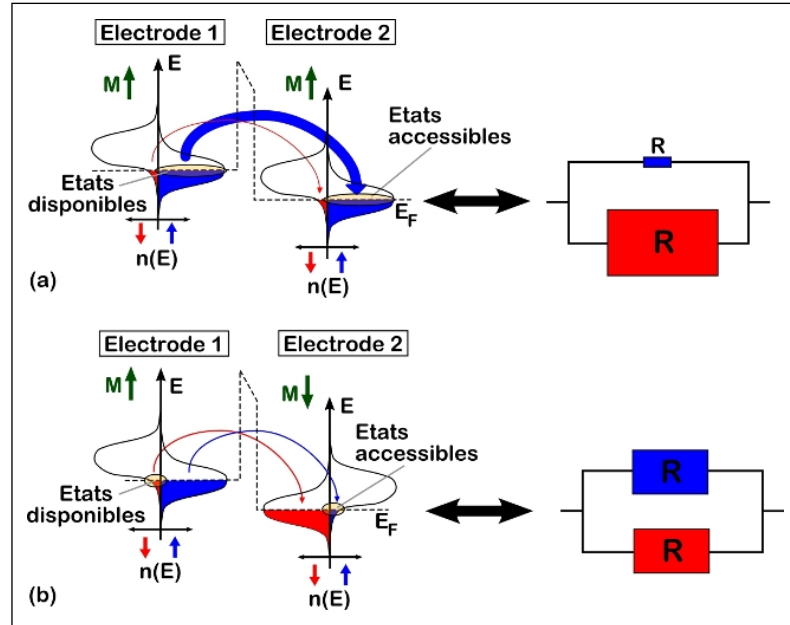
**a La magnétorésistance tunnel** Les effets de magnétotransport tunnel dans les jonctions tunnel magnétiques ont été l'objet de nombreuses études depuis les années 1970. L'effet tunnel est un mode de transport purement quantique, décrit par la résolution de l'équation de Schrödinger. Il s'agit de la possibilité qu'a une particule de transiter d'un état quantique vers un autre état séparé par une barrière de potentiel, alors que l'énergie de cette particule ne lui permet pas de passer au-dessus de la barrière. Dans une jonction tunnel magnétique, deux électrodes ferromagnétiques sont séparées par une barrière isolante. Le transport d'une électrode à l'autre se faisant par effet tunnel à travers la barrière.

Suivant les configurations magnétiques des deux électrodes, les densités d'état au niveau de Fermi entraînent des conductivités différentes des deux canaux de spins considérés comme deux canaux de conduction parallèles et indépendants (voir figure III.3). La résistivité d'une jonction tunnel magnétique dépend donc de l'orientation relative de l'aimantation des deux électrodes. Pour une jonction avec deux électrodes identiques, elle est plus importante lorsque les aimantations des deux électrodes sont antiparallèles.

**b Modèle de Jullière** Jullière a été le premier en 1975 [Jullière, 1975] à réaliser des expériences de magnétotransport par effet tunnel dépendant du spin entre deux électrodes ferromagnétiques – fer et cobalt – séparées par une barrière isolante de germanium amorphe. La magnétorésistance tunnel est définie par la différence de résistance en configuration antiparallèle  $R_{AP}$  et parallèle  $R_P$  divisée par la résistance en configuration parallèle.

$$TMR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} \quad (III.12)$$

La valeur de magnétorésistance tunnel mesurée par Jullière est de 14 % à 4,2 K, avec une tension appliquée quasi-nulle. Le *modèle de Jullière* consiste à relier directement l'amplitude de la magnétorésistance à la polarisation en spin des électrodes ferromagnétiques telle que définie par l'équation IV.14 page 126. En faisant l'hypothèse que le transport par effet tunnel conserve le spin des porteurs, les électrons de spin  $\uparrow$  – respectivement de spin  $\downarrow$  – de la première électrode ne pourront être acceptés dans la seconde électrode que par des états libres correspondant au spin  $\uparrow$  – respectivement au spin  $\downarrow$  –. En écrivant que la conductance du système dans un état d'aimantation donné était proportionnelle au produit des densités d'états participant au transport tunnel dans chacune des électrodes, le modèle



**FIGURE III.3:** Schéma de principe de la Magnétorésistance tunnel pour une jonction tunnel magnétique avec deux électrodes identiques. **(a)** Lorsque les deux électrodes sont en configuration parallèle, une des deux directions de spin a une grande densité d'états au niveau de Fermi aussi bien pour l'électrode émettrice que réceptrice – ici la direction  $\uparrow$ . La conductivité pour ce canal est importante, très faible pour l'autre. **(b)** Lorsque les deux électrodes sont en configuration antiparallèle, la direction de spin possédant une grande densité d'états au niveau de Fermi pour l'électrode émettrice n'aura que peu d'états disponibles dans l'électrode réceptrice et réciproquement. La conductivité pour les deux canaux de spins est donc faible. Cette configuration magnétique – aimantation antiparallèle des électrodes – est équivalente à deux fortes résistances en parallèle. La configuration **(a)** présente donc une résistance globale inférieure à la configuration **(b)**.

de Jullière relie la valeur de la magnétorésistance tunnel à la polarisation en spin  $\mathcal{P}_1$  et  $\mathcal{P}_2$  des deux électrodes :

$$TMR = \frac{2 \cdot \mathcal{P}_1 \cdot \mathcal{P}_2}{1 - \mathcal{P}_1 \cdot \mathcal{P}_2} \quad (\text{III.13})$$

Ce modèle ne prévoit pas de limite théorique à la magnétorésistance tunnel, la valeur divergeant pour deux polarisations égales à 1, comme dans les demi-métaux. Il a donné de bons résultats prédictifs pour les systèmes comportant une barrière isolante amorphe – Moodera *et al.* [Moodera, 1995] ont mesuré une valeur de 24 % à 4,2 K sur un système FeCo/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co, la valeur prédite étant de 27 % en prenant  $\mathcal{P}_{CoFe} = 47\%$  et  $\mathcal{P}_{Co} = 34\%$ .

Cependant ce modèle n'explique pas certains phénomènes comme la chute de la magnétorésistance tunnel lorsque la tension appliquée sur le système augmente, phénomène systématiquement observé y compris par Jullière. De plus la magnétorésistance tunnel de la structure ne dépend que de la polarisation des électrodes ferromagnétiques la constituant et pas de la barrière tunnel – hauteur, épaisseur, ... De plus il a été vu au paragraphe b page 51 que la polarisation en spin du courant extrait du métal dépend de la nature de la barrière isolante utilisée.

**c Modèle de Slonczewski** En 1989, Slonczewski [Slonczewski, 1989] a proposé un nouveau modèle pour l'effet de magnétorésistance entre deux électrodes identiques séparées par une barrière isolante de hauteur finie. Dans ce modèle les densités d'états au niveau de Fermi sont schématisées simplement, les bandes de spins  $\uparrow$  et  $\downarrow$  étant décalées d'une énergie  $2h$ . Les densités d'états électroniques ne prennent pas en compte la liaison établie par l'électrode avec la barrière isolante. En revanche, celle-ci est décrite plus finement comme une barrière de potentielle rectangulaire d'épaisseur  $d$  et de hauteur  $U$  finies. Le calcul de Slonczewski, basé sur le modèle de l'électron libre donne pour expression de la magnétorésistance :

$$TMR = \frac{2 \cdot \mathcal{P}_{eff}^2}{1 - \mathcal{P}_{eff}^2} \quad (\text{III.14})$$

où  $\mathcal{P}_{eff}$  est la polarisation en spin *effective* de l'ensemble métal ferromagnétique/barrière tunnel. Dans les électrodes ferromagnétiques qui sont identiques, les deux canaux de conduction ont pour vecteurs d'onde respectifs  $k_{\uparrow}$  et  $k_{\downarrow}$ , le vecteur d'onde  $\kappa$  étant identiques pour les deux directions de spin dans la barrière tunnel.  $k_{\uparrow}$ ,  $k_{\downarrow}$  et  $\kappa$  sont définis par :

$$k_{\uparrow} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} \cdot (E - h)} \quad (\text{III.15})$$

$$k_{\downarrow} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} \cdot (E + h)} \quad (\text{III.16})$$

$$\kappa = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} \cdot (U - E)} \quad (\text{III.17})$$

La polarisation effective de la structure est reliée à ces vecteurs d’onde par :

$$\mathcal{P}_{eff} = \frac{k_{\uparrow} - k_{\downarrow}}{k_{\uparrow} + k_{\downarrow}} \cdot \frac{\kappa^2 - k_{\uparrow}k_{\downarrow}}{\kappa^2 + k_{\uparrow}k_{\downarrow}} \quad (\text{III.18})$$

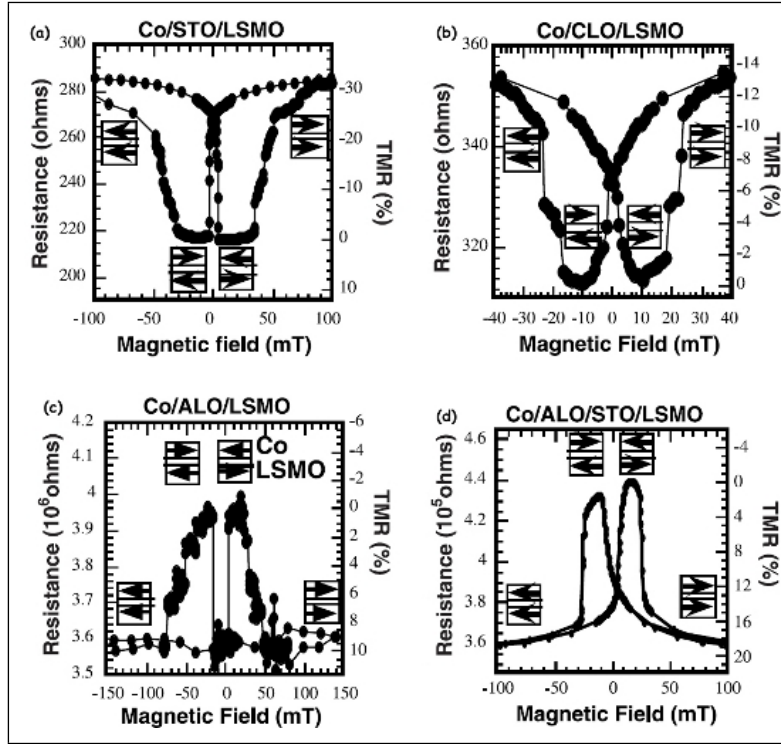
L’expression de la magnétorésistance tunnel est proche de celle exprimée par Jullière, le terme de polarisation effective étant le produit de deux termes, un correspondant à la polarisation en spin des électrons de conduction à l’énergie de Fermi – c’est à dire à la polarisation de l’électrode ferromagnétique seule telle qu’elle avait été donnée par Jullière –, l’autre terme dépendant de la hauteur de la barrière tunnel par l’intermédiaire de  $\kappa$ . Dans le cas d’une barrière tunnel de hauteur infinie, la polarisation définie par Slonczewski rejoint celle donnée par Jullière. Ce modèle est le premier évoquant le fait que la polarisation du courant tunnel ne dépend pas exclusivement des caractéristiques des matériaux ferromagnétiques employés comme électrodes mais qu’elle dépend de l’ensemble du système électrodes-isolant.

**d Injection de spins** Les modèles présentés précédemment, plus élaborés, essayent de modéliser une barrière tunnel *réelle*, d’une épaisseur et d’une hauteur finies. Cependant, ils ne prennent pas en compte les facteurs structurels liés à la barrière comme sa non-uniformité – difficile à modéliser mais importants en pratique –, mais surtout la nature chimique des différentes couches et aux liaisons covalentes qui en découlent.

**Effet du couplage barrière-électrode** Tsymbal *et al.* [Tsymbal, 1997] ont modélisé le cas du transport tunnel à partir d’une électrode ferromagnétique – fer ou cobalt – vers une électrode métallique non magnétique à travers une barrière isolante supposée sans défaut. La structure de bandes de l’électrode d’injection est prise en compte, dans le sens où des polarisations en spin différentes sont attribuées aux différents états électroniques –  $s$ ,  $d$ , ... –. Suivant la nature des liaisons entre l’électrode injectrice et la barrière, certains types de porteurs vont participer plus que d’autres au transport tunnel. Leur calcul montre que la polarisation en spin du courant injecté depuis le cobalt à travers une barrière tunnel est positive lorsque les

liaisons avec la barrière favorisent le transport des électrons  $s$  et négative lorsque le transport est assuré par des électrons  $d$ .

Ce point peut être illustré par les mesures de magnétorésistance tunnel réalisées par De Teresa *et al.* [Teresa, 1999] sur des jonctions tunnel magnétiques où varie la nature de la barrière isolante. La mesure de cette magnétorésistance entre deux électrodes ferromagnétiques de Co et de  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  – LSMO – donne des valeurs positive ou négative suivant la barrière isolante mise en jeu pour une même tension appliquée (voir figure III.4). Les travaux de Park *et al.* [Park, 1998] leur permettant d'exclure un changement de signe de magnétorésistance liée à l'électrode de LSMO, De Teresa *et al.* ont interprété ces variations comme provenant de l'interface cobalt/barrière tunnel : les liaisons covalentes favorisant le transport par électrons  $s$  entraînent une magnétorésistance positive tandis que le transport par électrons  $d$  se traduit par une magnétorésistance négative.



**FIGURE III.4:** D'après [Teresa, 1999]. Mesures de magnétorésistance tunnel à 10 mV réalisées sur des structures, (a)  $\text{Co}/\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ , (b)  $\text{Co}/\text{Ce}_{0.69}\text{La}_{0.31}\text{O}_{0.1845}/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ , (c)  $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  et (d)  $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ . La dernière expérience servant à montrer que l'inversion de polarisation en spin est due à un effet de couplage entre la barrière et le cobalt plutôt qu'à un effet de propagation au sein de la barrière tunnel.

**Rôle de la structure cristallographique** L'expérience présentée dans le paragraphe d page 56 concerne des jonctions tunnel magnétiques élaborées par pulvérisation cathodique, comportant des électrodes polycristallines et des barrières isolantes amorphes. Dans des métaux épitaxiés, le transport n'est plus moyenné sur toutes les directions de vecteurs d'ondes et l'orientation cristalline des matériaux joue un rôle important. Yuasa *et al.* [S.Yuasa, 2000] ont par exemple étudié l'influence de l'orientation cristalline d'une électrode ferromagnétique sur l'effet de magnétorésistance tunnel. Sur des systèmes  $Fe_{50}Co_{50}/Al_2O_3/Fe$  comportant des électrodes inférieures de fer de différentes orientations cristallines, l'amplitude du signal de magnétorésistance mesuré à température ambiante s'élève respectivement à 13%, 32% et 42% lorsque l'orientation du cristal fer est (100), (110) ou (211). Ce résultat semble indiquer une anisotropie dans la polarisation en spin des états électroniques participant au courant tunnel : les différents types d'électrons présentent des fonctions d'onde de symétries différentes, le caractère monocristallin du système rend le transport des électrons anisotrope. Il faut toutefois rester conscient du fait que le protocole expérimental employé peut conduire à une croissance de la partie supérieure de la structure – barrière tunnel et électrode supérieure – légèrement différente dans chaque cas, et par là fausser le résultat.

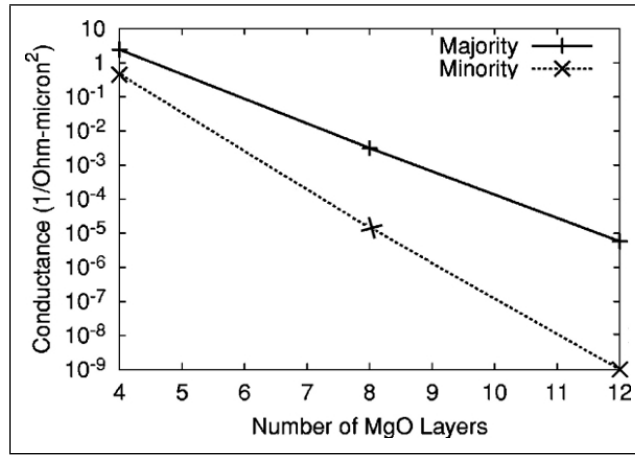
Outre la structure cristallines des électrodes, il convient aussi de prendre en compte la structure de bande de la barrière tunnel qui ne peut plus être considérée comme une simple barrière de potentiel apportant un facteur d'atténuation à la conductance totale. Butler *et al.* [Butler, 2001] ont utilisé le formalisme de Landaüer-Buttiker pour exprimer la conductance tunnel suivant les différents canaux de conduction, c'est à dire suivant les différents états électroniques. Ils ont montré que pour une jonction  $Fe/MgO/Fe$  la conductance du canal de spin majoritaire décroît moins vite que celle du canal minoritaire lorsque l'épaisseur de MgO augmente. Ce phénomène est expliqué par le fait qu'une barrière tunnel épitaxiée ne correspond pas seulement à une barrière de potentiel de hauteur  $U$ , mais possède aussi une structure électronique bien définie : les états de Bloch de l'électrode, d'une symétrie donnée, vont se raccorder aux états évanescents de même symétrie dans la bande interdite de la barrière tunnel.

Les polarisations des couples électrode ferromagnétique - barrière tunnel seront vues dans les parties 2 page 66 pour l'injection de spins dans le GaAs et 3 page 84 pour l'injection dans le Si.

### 1.3 Injection à travers une barrière tunnel

Le principal problème à résoudre lorsqu'on cherche à injecter des spins depuis une électrode ferromagnétique métallique dans un matériau semi-conducteur est le problème connu sous le nom de *désaccord de conductivité* ou *conductance*





**FIGURE III.5:** D'après [Butler, 2001]. Evolution de la conductance tunnel des canaux de spins majoritaires et minoritaires en fonction de l'épaisseur de MgO dans une jonction Fe/MgO/Fe avec deux électrodes en configuration parallèle. Une couche de MgO correspond à 2,1 Å.

*mismatch* : Schmidt *et al.* [Schmidt, 2000] ont mis en évidence le fait que lorsqu'un courant circule d'un métal ferromagnétique dans un semi-conducteur, la polarisation du courant acquise dans le premier matériau disparaît totalement avant l'interface en raison de la différence de conductivité entre les deux matériaux. Rashba [Rashba, 2000] puis Fert et Jaffrès [Fert, 2001] ont montré que l'introduction d'une résistance d'interface dépendant du spin – typiquement une barrière tunnel – permettait de s'affranchir de ce problème et de conserver la polarisation en spin du courant au sein du semi-conducteur.

### 1.3.1 Explication physique

**a Contact direct** Lorsqu'un courant électrique circule dans un métal, la plupart des événements de diffusion n'affecte pas le spin des électrons. Il y a donc deux canaux de conduction distincts, les canaux de spin  $\uparrow$  et  $\downarrow$  avec des résistivités  $\rho_+$  et  $\rho_-$  qui peuvent être différentes. Pour un métal ferromagnétique il y a un déséquilibre des densités d'états électroniques au niveau de Fermi, les deux canaux de conduction ne sont pas équivalents et en absence de contact avec un autre matériau, le courant a une polarisation en spin  $\mathcal{P}$  donnée par :

$$\mathcal{P} = \frac{j_+ - j_-}{j_+ + j_-} \quad (\text{III.19})$$

où  $j_+$  et  $j_-$  sont les densités de courant portées par les canaux de spin  $\uparrow$  et  $\downarrow$ .

Dans un semi-conducteur, la densité d'états disponibles au niveau de Fermi est la même pour les deux directions de spin. Un courant qui passe d'un métal ferromagnétique vers un semi-conducteur passe donc d'un état polarisé à un état non polarisé.

Lorsque le courant traverse l'interface avec le semi-conducteur, les spins up vont être excédentaires et les spins down déficitaires. En effet, lorsqu'ils sont en contact direct, les niveaux de Fermi des deux matériaux s'alignent. Or les deux canaux de spin ont la même densité d'état dans le semi-conducteur. En régime permanent, cet excédent de spins up induit une accumulation de spins – avec une extension spatiale de l'ordre de  $l_{sf}$ , ou  $l_{sf}$  est la longueur de diffusion du spin – de part et d'autre de l'interface. Puisqu'il y a accumulation, les spins up occupent des niveaux d'énergie plus hauts que les spins down, il y a un décalage des potentiels chimiques des deux canaux. Pour minimiser cette énergie, les électrons excédentaires vont se retourner. Ces diffusions peuvent avoir lieu aussi bien dans le métal ferromagnétique que dans le semi-conducteur. Cependant, la densité d'états au niveau de Fermi étant bien plus importante dans le métal, il y a plus d'états disponibles pour se retourner et les processus de spin-flip y sont plus rapides. Ainsi, toute la dépolarisation a lieu avant l'interface.

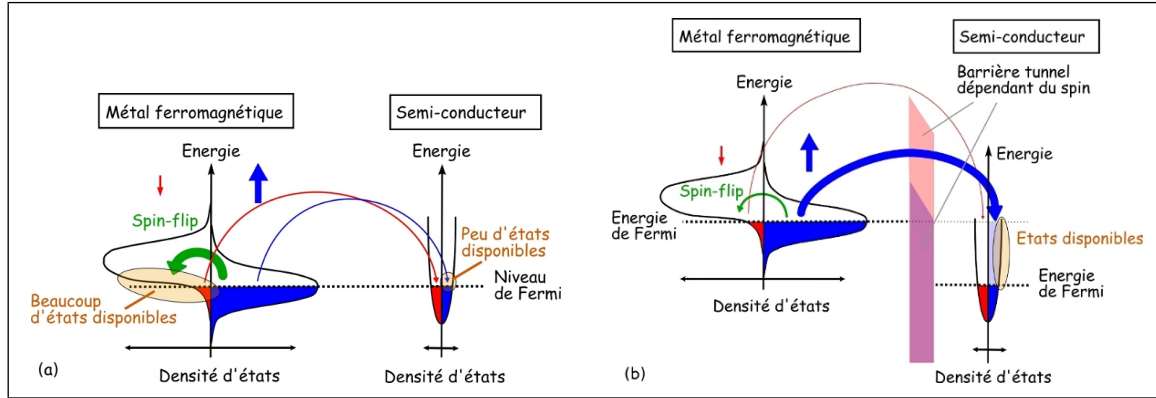
En absence de barrière tunnel, le courant injecté dans un semi-conducteur depuis une électrode ferromagnétique est donc totalement dépolarisé.

**b Contact tunnel** Une solution pour remédier à ce problème peut être d'insérer une barrière résistive dépendant du spin à l'interface : typiquement une barrière tunnel.

La jonction tunnel va jouer deux rôles distincts. Premièrement elle agit comme un filtre à spin et laisse passer préférentiellement les spins excédentaires. Cette propriété, liée au couplage des orbitales issues de l'électrode et de la barrière peut se voir comme une hauteur effective de barrière différente pour les deux canaux de spins. Ensuite, lorsqu'une barrière tunnel est insérée entre deux matériaux, il n'y a plus nécessairement alignement des niveaux de Fermi des deux matériaux. La figure III.6 page ci-contre montre que lorsque les niveaux de Fermi ne sont plus alignés, il est moins coûteux en énergie de remplir les états de spin majoritaire dans le matériau semi-conducteur que ceux de spin minoritaire dans le métal.

### 1.3.2 Application aux cas $FePt/MgO/GaAs$ et $CoPt/Al_2O_3/Si$

Le point crucial de l'injection de spin depuis une électrode métallique ferromagnétique vers un semi-conducteur est la dépolarisation du courant à l'interface entre les deux matériaux. Dans la partie 1.3.1 page précédente, nous avons vu qualitativement pourquoi le courant se dépolarisait à l'interface, et comment



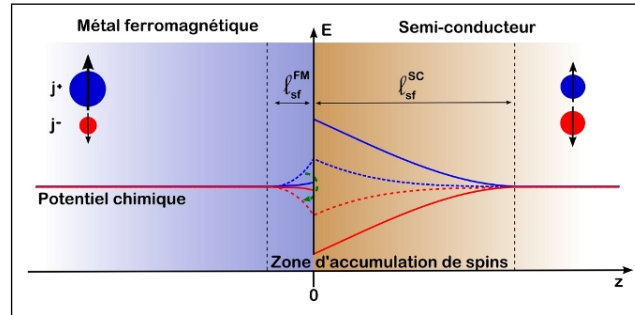
**FIGURE III.6:** Représentation schématique des densités d'états des bandes de conceptions de l'électrode ferromagnétique et du semi-conducteur. Les deux directions de spins sont représentées, le canal majoritaire du métal ferromagnétique en bleu et le mineuritaire en rouge. (a) Les deux matériaux sont directement contactés et (b) une barrière tunnel est insérée à l'interface.

cette dépolarisation pouvait être réduite en introduisant une barrière tunnel. Dans cette partie nous allons calculer directement la polarisation du courant à l'interface métal–semi-conducteur en fonction de la présence ou non d'une barrière tunnel. Ce calcul reprend celui mené par Fert et Jaffrès [Fert, 2001].

**a Modélisation** Le calcul se base sur le schéma III.7 page suivante. Le demi-espace défini par  $z < 0$  est occupé par un métal ferromagnétique noté  $FM$ . La polarisation en spin du courant  $\mathcal{P}$  dans ce métal en absence de contact est définie par l'équation III.19 page 59. Le courant étant porté par les électrons au niveau de Fermi, la polarisation du métal peut aussi être définie comme  $\mathcal{P} = \mathcal{P}_{spin} = \frac{n_{\uparrow}(E_F) - n_{\downarrow}(E_F)}{n_{\uparrow}(E_F) + n_{\downarrow}(E_F)}$ , avec  $n_{\uparrow}(E_F)$  et  $n_{\downarrow}(E_F)$  des densités d'états au niveau de Fermi pour les spins  $\uparrow$  et  $\downarrow$ . La plupart des événements de diffusion n'affectant pas le spin des électrons, il est possible de considérer deux canaux de conductivités distincts, possédant chacun une résistivité propre  $\rho_{+}^{FM}$  et  $\rho_{-}^{FM}$ , ainsi qu'un potentiel chimique  $\mu_{+}^{FM}$  et  $\mu_{-}^{FM}$ . Les résistivités des canaux de spin sont données par  $\rho_{+(-)}^{FM} = 2(1 - (+)\mathcal{P})\rho^{FM}$ .

Le demi-espace défini par  $z > 0$  est occupé par un matériau semi-conducteur noté  $SC$ . Il n'y a pas de polarisation dans ce matériau, les deux canaux de spins étant équivalents, et de même résistivité  $\rho_{+}^{SC} = \rho_{-}^{SC} = 2\rho^{SC}$ .

L'étude de l'injection de courant polarisée depuis une électrode ferromagnétique vers un semi-conducteur va se faire suivant deux cas : dans le premier cas, les



**FIGURE III.7:** Schéma de principe du transport entre une électrode ferromagnétique située en  $z < 0$  et un matériau semi-conducteur en  $z > 0$  avec éventuellement une barrière tunnel d'épaisseur nulle en  $z = 0$ . Loin de la zone de contact, les canaux de spin sont dissymétriques dans le métal ferromagnétique et équivalents dans le semi-conducteur. Une accumulation de spins d'extension spatiale la longueur de diffusion de spin se crée de part et d'autre de l'interface. Cette accumulation de spin entraîne un décalage des potentiels chimiques des électrons de spin up en bleu et down en rouge responsable de la dépolarisation du courant. En absence de barrière tunnel il y a continuité de  $\Delta\mu$  (traits pointillés) et une forte dépolarisation du courant avant l'interface. L'introduction d'une barrière tunnel permet la discontinuité (trait continu) et la dépolarisation du courant avant l'interface est donc limitée.

deux matériaux sont connectés simplement. Il n'y a alors pas de résistance d'interface. Dans le second cas, on place en  $z = 0$  une barrière tunnel d'épaisseur nulle et dont la résistance va dépendre du canal de conduction. Les résistances de barrière pour les deux canaux de spin sont données par  $r_{+(-)} = 2r_b(1 - (+)\gamma)$ , où  $r_b$  est la résistance de barrière et  $\gamma$  sa polarisation – la polarisation de la barrière n'est pas une propriété intrinsèque de l'isolant utilisé mais dépend du couplage avec l'électrode ferromagnétique.

**b Mise en équation** Pour résoudre ce problème, on utilise les équations de transport en spin introduites par Johnson et Silsbee [Johnson, 1987] et Van Son *et al.* [van Son, 1987] étendues au formalisme de Boltzman par Valet et Fert [Valet, 1993].

En définissant les grandeurs  $\Delta\mu(z) = \mu_+(z) - \mu_-(z)$  et  $\Delta j(z) = j_+(z) - j_-(z)$  – les dépendances en  $z$  seront implicites dans la suite du calcul – et en supposant que le spin des électrons n'est pas affecté par la plupart des événements de diffusion, les courants et potentiels chimiques obéissent aux équations suivantes :

$$j = j_+ + j_- \quad (\text{III.20})$$

$$j_{+(-)} = \frac{1}{|e|\rho_{+(-)}} \frac{\partial \mu_{+(-)}}{\partial z} \quad (\text{III.21})$$

$$\frac{\partial^2 \Delta\mu}{\partial z^2} = \frac{\Delta\mu}{l_{sf}^2} \quad (\text{III.22})$$

où  $l_{sf}$  est la longueur de diffusion de spin qui dépend du matériau considéré.

Les conditions aux limites en  $\pm\infty$  sont simplement :

$$\Delta\mu^{FM}(z = -\infty) = \Delta\mu^{SC}(z = +\infty) = 0 \quad (\text{III.23})$$

$$\Delta j^{FM}(z = -\infty) = \mathcal{P} \quad (\text{III.24})$$

$$\Delta j^{SC}(z = +\infty) = 0 \quad (\text{III.25})$$

En  $z = 0$ , il y a continuité de  $j_+$  et  $j_-$ , d'où :

$$\Delta j^{FM}(z = 0^-) = \Delta j^{SC}(z = 0^+) \quad (\text{III.26})$$

En revanche, il n'y a continuité des potentiels chimiques qu'en absence de résistance d'interface. La présence d'une barrière tunnel introduit donc une discontinuité à l'interface. Cette condition peut être résumée ainsi :

$$\mu_{+(-)}^{SC}(z = 0^+) - \mu_{+(-)}^{FM}(z = 0^-) = er_{+(-)}j_{+(-)}(z = 0) \quad (\text{III.27})$$

En prenant  $r_+ = r_- = 0$  en absence de barrière tunnel, on retrouve bien la continuité du potentiel chimique.

**c Résolution** En intégrant l'équation III.22 séparément dans le métal et dans le semi-conducteur, et en utilisant les conditions en  $\pm\infty$  on trouve :

$$\Delta\mu^{FM} = Ae^{z/l_{sf}^{FM}} \quad (\text{III.28})$$

$$\Delta\mu^{SC} = Be^{-z/l_{sf}^{SC}} \quad (\text{III.29})$$

ou A et B sont deux constantes.

En remplaçant  $\mu_{+(-)}$  par  $\mu_{-(+)} + (-)\Delta\mu$  dans l'équation III.21 et en utilisant l'équation III.20, on obtient :

$$j_{+(-)} = \frac{\rho_{-(+)} }{\rho_{++} + \rho_{--}} j + \frac{\text{Constante}}{el_{sf}(\rho_{++} + \rho_{--})} e^{\pm z/l_{sf}} \quad (\text{III.30})$$

Comme dans le semi-conducteur on a  $\rho_+^{SC} = \rho_-^{SC} = 2\rho^{SC}$  et que dans l'électrode ferromagnétique  $\rho_+^{FM} + \rho_-^{FM} = 2\rho^{FM}$ , et en utilisant à nouveau l'équation III.21 que l'on intègre, on obtient finalement

$$\begin{aligned} j_{+(-)}^{FM} &= (1 + (-)\mathcal{P}) \frac{j}{2} + (-) \frac{A}{4el_{sf}^{FM}\rho^{FM}} e^{z/l_{sf}^{FM}} \\ j_{+(-)}^{SC} &= \frac{j}{2} - (+) \frac{B}{4el_{sf}^{SC}\rho^{SC}} e^{-z/l_{sf}^{SC}} \\ \mu_{+(-)}^{FM} &= e\rho^{FM}(1 - \mathcal{P}^2)jz + (-) \frac{A(1 - (+)\mathcal{P})}{2} e^{z/l_{sf}^{FM}} + C \\ \mu_{+(-)}^{SC} &= e\rho^{SC}jz + (-) \frac{B}{2} e^{-z/l_{sf}^{SC}} \end{aligned} \quad (\text{III.31})$$

Pour la suite, définissons pour chaque matériau une *résistance de spin* comme le produit de la résistivité par la longueur de cohérence de spin :

$$r^{FM} = \rho^{FM} l_{sf}^{FM} \quad (\text{III.32})$$

$$r^{SC} = \rho^{SC} l_{sf}^{SC} \quad (\text{III.33})$$

Les conditions aux limites en  $z = 0$  définies en III.26 et III.27 permettent de raccorder ces solutions et de déterminer les constantes A, B, C.

$$\begin{aligned} A &= -2er^{FM} j \frac{(\mathcal{P} - \gamma)r_b + \mathcal{P}r^{SC}}{r^{FM} + r^{SC} + r_b} \\ B &= -2er^{SC} j \frac{\mathcal{P}r^{FM} + \gamma r_b}{r^{FM} + r^{SC} + r_b} \\ C &= ej \frac{(\gamma + \gamma\mathcal{P} - \mathcal{P}^2 - 1)r^{FM}r_b - r^{SC}r_b - (1 - \gamma^2)r_b^2 - \mathcal{P}^2 r^{FM}r^{SC}}{r^{FM} + r^{SC} + r_b} \end{aligned} \quad (\text{III.34})$$

La polarisation du courant injectée dans le semi-conducteur est alors :

$$P_{courant}^{SC}(z) = \frac{j_+^{SC}(z) - j_-^{SC}(z)}{j_+^{SC}(z) + j_-^{SC}(z)} \quad (\text{III.35})$$

$$\boxed{P_{courant}^{SC}(z) = \frac{Pr^{FM} + \gamma r_b}{r^{FM} + r^{SC} + r_b} e^{-z/l_{sf}^{SC}}} \quad (\text{III.36})$$

La polarisation en spin du courant dans le semi-conducteur s'exprime donc comme la polarisation injectée en  $z = 0$  puis décroît comme la longueur de cohérence de spin. La longueur de cohérence de spin  $l_{sf}$  dépend du matériau considéré. Dans l'arséniure de gallium dopé  $n = 1.10^{15} \text{ cm}^{-3}$ , un temps de vie de spin  $\tau_s \approx 42 \text{ ns}$  a été observé par Dzhioev *et al.*, soit une longueur de diffusion de spin  $l_{sf} \approx 10 \mu\text{m}$  [Dzhioev, 1997] 4,2 K. Dans le silicium les temps de vie de spin attendus sont bien plus longs (voir le chapitre IV page 113). Huang *et al.* [Huang, 2007] ont observé un transport de spins sur des longueurs de  $350 \mu\text{m}$  et des temps de vie de spin estimés à plus de  $500 \text{ ns}$  à 60 K. Pour les systèmes étudiés dans ce manuscrit, les longueurs sur lesquelles sont observées le transport polarisé en spin dans les semi-conducteurs – Si ou GaAs – sont typiquement de l'ordre de la dizaine à la centaine de nanomètres. La polarisation du courant peut donc pratiquement y être considérée comme constante et l'observation d'un courant polarisé est gouvernée par l'injection en  $z = 0$ .

La polarisation du courant injecté depuis une électrode ferromagnétique s'écrit donc comme le rapport de différentes résistances de spin. On peut remarquer que  $r^{SC} \gg r^{FM}$ , la résistance de spin dans le métal ferromagnétique est toujours négligeable devant celle du matériau semi-conducteur.

En absence de barrière tunnel, la résistance d'interface est nulle et la polarisation du courant injecté s'écrit :  $P_{courant}^{SC} = \frac{Pr^{FM}}{r^{SC}} \ll 1$ . On retrouve le résultat de Schmidt *et al.* montrant que le courant est entièrement dépolarisé à l'interface.

Lorsque la résistance liée à l'interface est non nulle, la polarisation du courant injecté s'écrit  $P_{courant}^{SC} \approx \frac{Pr^{FM} + \gamma r_b}{r^{SC} + r_b}$ . Le rôle du filtrage en spin de la barrière est alors évident. Supposons que la barrière soit une simple barrière de potentiel ne dépendant pas de la direction de spin. Cela signifie que la polarisation  $\gamma$  de la barrière est nulle et l'on trouve alors  $P_{courant}^{SC} \approx \frac{Pr^{FM}}{r^{SC} + r_b} \ll 1$ . Pour que l'injection de courant polarisé soit efficace, il faut donc que la barrière joue le rôle de filtre en spin.

Dans le cas où le couple électrode ferromagnétique–barrière tunnel possède une polarisation non nulle, le courant injecté peut donc être polarisé. La polarisation du courant injecté est gouvernée par la polarisation de la partie possédant la

résistance de spin la plus élevée – si  $r^{FM} \gg r^b$ , alors  $\mathcal{P}_{courant}^{SC}$  sera proportionnel à  $\mathcal{P}$  la polarisation du métal ferromagnétique, tandis que si  $r^{FM} \ll r^b$ ,  $\mathcal{P}_{courant}^{SC}$  sera proportionnel à  $\gamma$  la polarisation de la barrière tunnel. Une condition pour avoir une injection efficace dans un semi-conducteur donné est par exemple d’utiliser une barrière fortement résistive et polarisée, la polarisation du courant injecté étant alors simplement majorée par  $\gamma$ , qui peut être très grand dans des barrières épitaxiées. Cependant il a été montré par Fert *et al.* [Fert, 2007] (voir paragraphe 2.1 page 10) que la résistance d’interface ne devait pas être trop grande pour permettre de réaliser à terme le transistor de Datta et Das.

Le problème de la résistance d’interface électrode ferromagnétique – matériau semi-conducteur est donc un compromis subtil à trouver : une interface trop peu résistive ne permet pas d’injecter efficacement des spins et une interface trop résistive n’autorise pas à les détecter électriquement. En effet, si la résistance d’interface est trop forte, la probabilité pour un spin d’être transmis depuis le semi-conducteur vers l’électrode ferromagnétique est faible. Les spins vont alors se réfléchir plusieurs fois sur les barrières avant d’être transmis et peuvent se dépolariser avant d’être transmis. ”

## 2 FePt-MgO pour l’injection dans le GaAs

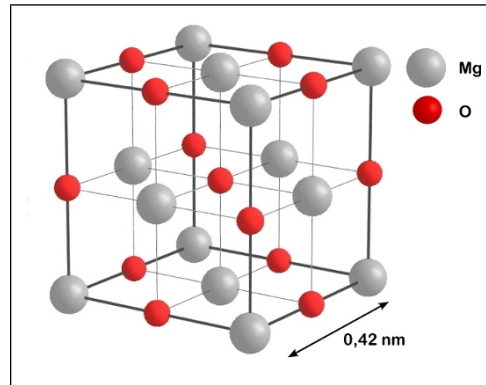
La première partie – d’un point de vue temporel – de ce travail de thèse a visé à injecter des spins dans un semi-conducteur III-V, le GaAs. Les contraintes imposées par cette étude étaient de faire croître sur le GaAs un injecteur comprenant une barrière tunnel et une couche à aimantation perpendiculaire tout épitaxiées, empilement possédant une polarisation en spin maximale au niveau de Fermi. La maîtrise des croissances de MgO-FePt par épitaxie par jets moléculaires sur substrats de MgO répondant à ces critères est un savoir faire acquis au sein du laboratoire grâce aux travaux de thèse de V. Gehanno [Gehanno, 2007], D. Halley [Halley, 2001] et J.-P. Attane [Attane, 2003]. La reprise épitaxiale de MgO puis FePt sur substrat de GaAs a été développée et mise au point par P. De Person [Person, 2007] et au début de ce travail de thèse.

### 2.1 Croissance par Epitaxie par Jets Moléculaires

#### 2.1.1 Structure cristallographique

**a Oxyde de magnésium** Le MgO a la structure cristallographique du NaCl, c’est à dire un réseau de Bravais cubique à faces centrées comportant un atome de magnésium et un atome d’oxygène, les deux sous-réseaux étant décalé de  $(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2})$ . Le paramètre de maille du MgO est de 4.211 Å.





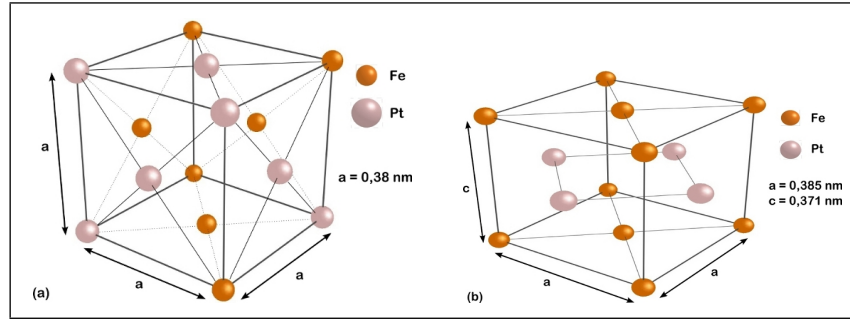
**FIGURE III.8:** Schéma de la maille de MgO. La structure peut être construite en plaçant alternativement les atomes de magnésium et d'Oxygène sur les noeuds d'un réseau cubique simple.

**b Fer-platine** Les propriétés magnétiques d'un film mince de fer-platine dans des proportions stœchiométriques équiatomiques varient suivant l'ordre chimique de l'alliage. Celui-ci dépend des conditions d'élaboration, l'alliage obtenu par épitaxie par jets moléculaires pouvant être chimiquement désordonné ou dans la phase  $L1_0$  (voir figure III.9 page suivante). Dans cette étude, nous nous sommes attachés à faire croître des couches de FePt dans la phase ordonnée, l'anisotropie magnétocristalline qui en résulte étant suffisante pour que l'aimantation soit perpendiculaire.

Dans la structure désordonnée, les atomes de fer et de platine occupent aléatoirement les sites d'un réseau cubique à faces centrées. La maille est donc cubique et le paramètre de maille vaut  $3,80 \text{ \AA}$ .

La phase  $L1_0$  est caractérisée par un agencement chimique remarquable : la structure est un empilement de plans atomiques occupés exclusivement par des atomes de fer ou de platine, les atomes occupant toujours les sites d'un réseau cubique à faces centrées. L'empilement de ces monocouches atomiquement pures suivant l'axe  $[001]$  (axe  $c$ ) produit une déformation tétragonale du réseau cristallin suivant cette même direction, quantifiée par le rapport  $c/a$  – ce changement de symétrie entraînant les propriétés magnétiques souhaitées, voir le paragraphe 2.2.1 page 75 pour le lien entre mise en ordre et propriétés magnétiques. Ce rapport vaut 0,96 pour une phase FePt  $L1_0$  parfaitement ordonnée – il vaut 1 dans le cas d'un alliage désordonné. Les paramètres de maille de cette structure sont donc  $a_{\text{FePt}} = 3,85 \text{ \AA}$  et  $c_{\text{FePt}} = 3,71 \text{ \AA}$ .

La mise en ordre dans la phase  $L1_0$  est quantifiée par le paramètre d'ordre à longue distance  $S$  défini par la relation :  $S = |n_{\text{Fe/Fe}} - n_{\text{Fe/Pt}}|$ .  $n_{\text{Fe/Fe}}$  et  $n_{\text{Fe/Pt}}$  sont respectivement les taux d'occupation par des atomes de fer des sites des plans



**FIGURE III.9:** Schéma de la maille de FePt, (a) désordonnée chimiquement et (b) dans la phase  $L1_0$ . L'agencement chimique entraîne une déformation tétragonale de la maille, qui se contracte suivant l'axe  $c$  et s'étire dans le plan.

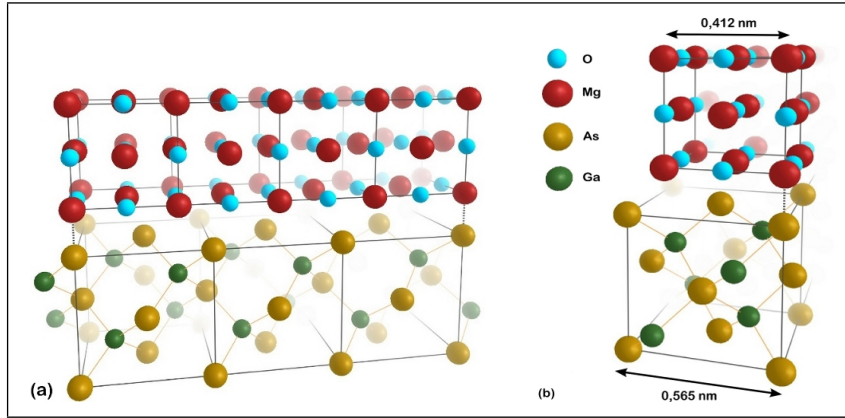
atomiques riches en fer ou en platine. Pour une phase complètement désordonnée,  $n_{Fe/Fe} = n_{Fe/Pt}$  et  $S$  est nul. A l'inverse, pour une phase parfaitement ordonnée,  $n_{Fe/Fe} = 1$  et  $n_{Fe/Pt} = 0$ , d'où un paramètre d'ordre égal à l'unité.

### 2.1.2 Epitaxie

**a MgO sur GaAs** L'épitaxie du MgO sur le GaAs est abondamment traitée dans la littérature, citons principalement les travaux de Hung *et al.* [Hung, 1992], Tarsa *et al.* [Tarsa, 1993] [Tarsa, 1995] et Boubeta *et al.* [Boubeta, 2001]. La difficulté de cette croissance réside dans le fait qu'il n'y a pas de relation d'épitaxie directe entre le GaAs et le MgO à cause d'une différence de paramètre de maille entre les deux structures trop importante – de l'ordre de 25,5 %,  $a_{MgO} = 4,21 \text{ Å}$  et  $a_{GaAs} = 5,65 \text{ Å}$ . Cependant, sous certaines conditions l'hétéro-épitaxie est possible, le MgO donnant la possibilité de former une couche tampon chimiquement stable. Les deux réseaux présentant une croissance cube sur cube – 4 cubes de MgO sur 3 cubes de GaAs – la différence de paramètre de maille à considérer devenant alors de l'ordre de 0,6%.

La croissance de MgO à partir d'un substrat de GaAs orienté (001) peut se faire suivant deux orientations, l'orientation (111) ou (001). L'orientation préférentielle est dictée par l'état de surface après préparation du substrat de GaAs [Tarsa, 1993] ; par exemple une surface de GaAs sur laquelle l'oxyde natif n'est que partiellement désorbé à du MgO orienté (111). La croissance d'une électrode de FePt ordonnée chimiquement sur du MgO nécessitant l'orientation (001) de ce dernier, nous nous focaliserons sur cette orientation.

Une étude attentive de la littérature permet de montrer que les paramètres structuraux de la couche MgO déposée dépendent de l'état de surface du GaAs et de la



**FIGURE III.10:** Croissance cube sur cube du MgO sur une surface riche arsenic de GaAs. (a) Ajustement de quatre cubes de MgO sur trois cubes de GaAs. (b) Désaccord de paramètre de maille entre les deux structures.

technique d'élaboration employée – méthode choisie pour évaporer le MgO et température du substrat. Ainsi, si Tarsa *et al.* ont observé que la croissance du MgO évaporé par ablation laser dans la direction (001) pouvait se faire sur les reconstructions (1x3) et (2x4) du GaAs, Pierre de Person a montré que pour notre bâti, seule la reconstruction (2x4) de la surface du GaAs permettait une épitaxie sans variants planaires du MgO [Person, 2007].

**b FePt sur MgO** Le but recherché lors de la croissance de l'injecteur est de savoir reprendre l'épitaxie du FePt(001)[001] sur MgO(001)[100] dans la structure tétragonale  $L1_0$  avec une relation d'épitaxie [100] sur [100], structure qui assure une aimantation perpendiculaire à la couche.

En raison de l'écart entre les paramètres de maille du MgO et du FePt –  $a_{MgO} = 4,21 \text{ \AA}$  et  $a_{FePt} = 3,85 \text{ \AA}$  soit  $\frac{\Delta a}{a} \approx 9 \%$  –, la croissance de la couche magnétique sur la barrière tunnel se fait de manière relaxée. Cette relaxation a lieu à la première monocouche. Pierre de Person a mesuré dans sa thèse par diffraction XRD les paramètres de maille du FePt dans des couches élaborées de cette manière : pour celles ne présentant qu'un seul variant, le paramètre de maille perpendiculaire vaut  $a_{FePt[001]} = 3,73 \text{ \AA}$  ; pour les couches de moins bonne qualité présentant des variants dans le plan, deux paramètres de maille apparaissent :  $a_{FePt[100]} = 3,82 \text{ \AA}$  et  $a_{FePt[001]} = 3,71 \text{ \AA}$ . Ces valeurs sont très proches des paramètres de maille de l'alliage de FePt tétragonal massif :  $a_{FePt[100]} = 3,85 \text{ \AA}$  et  $a_{FePt[001]} = 3,71 \text{ \AA}$ .

La contrainte liée à l'aimantation perpendiculaire de la couche magnétique n'impose pas nécessairement que la couche de FePt soit monocristalline. En revanche, tous les cristaux doivent être orientés dans la même direction, c'est à dire

avec l'axe [001] de la structure  $L1_0$  perpendiculaire au plan de la couche. Une certaine mosaïcité des orientations dans le plan n'est en revanche pas rédhibitoire et elle est fréquemment observée par diffraction RHEED.

Lors de certaines croissances, les clichés RHEED montrent des pics de sur-structure dans la direction [110] (voir figure III.13 page 74). Ces pics correspondent en fait à des variants de la direction [001] dans le plan de la couche, c'est à dire des cristaux dont l'orientation de l'axe  $c$  se trouve dans le plan de la couche. Les échantillons possédant une distribution d'orientation cristalline observable au RHEED ont une aimantation planaire.

### 2.1.3 Procédé expérimental

Ce paragraphe traite de la réalisation pratique d'une électrode MgO-FePt sur un substrat de GaAs au préalable protégé par une couche d'arsenic amorphe dans le bâti d'Épitaxie par Jets Moléculaires du laboratoire Nanostructures et Magnétisme.

**a Préparation du substrat** Les substrats de GaAs utilisés présentent une surface particulière. En fin de croissance dans un bâti de croissance III-V, ils ont été recouverts d'une couche d'arsenic amorphe (voir la partie 2.1.2 page 135). Cette préparation de surface permet de protéger la surface de GaAs de l'oxydation lors de la mise à l'air pour le transfert du bâti III-V au bâti métaux et ainsi de débiter l'épitaxie après sa désorption sur une surface de GaAs de très bonne qualité

La première étape de l'élaboration de ces échantillons consiste donc à désorber l'arsenic amorphe présent en surface. Afin de ne pas trop polluer la chambre d'évaporation avec de l'arsenic, un premier dégazage a lieu dans la chambre de préparation. L'échantillon dont la couche d'As est partiellement désorbée est ensuite introduit dans la chambre de dépôt où la fin de désorption se fait en observant l'apparition des reconstructions de surface par diffraction RHEED.

L'épitaxie du MgO se fait sur la reconstruction (2x4) de la surface (001) du GaAs [Hung, 1992]. L'obtention des différentes reconstructions de surface du GaAs en fonction de la température de chauffage sous flux d'arsenic a été étudié par Däweritz *et al.* [Däweritz, 1990], voir figure IV.13 page 138. La croissance dans notre bâti ne permet pas d'avoir ce flux d'arsenic, mais en chauffant l'échantillon, on obtient successivement les différentes reconstructions de moins en moins riches en arsenic. Celle-ci est obtenue pour une température d'environ 520°C.

**b Croissance** Les croissances du MgO puis du FePt sur substrat de GaAs se font chacune en trois étapes dont un recuit pour permettre une recristallisation des couches épitaxiées.

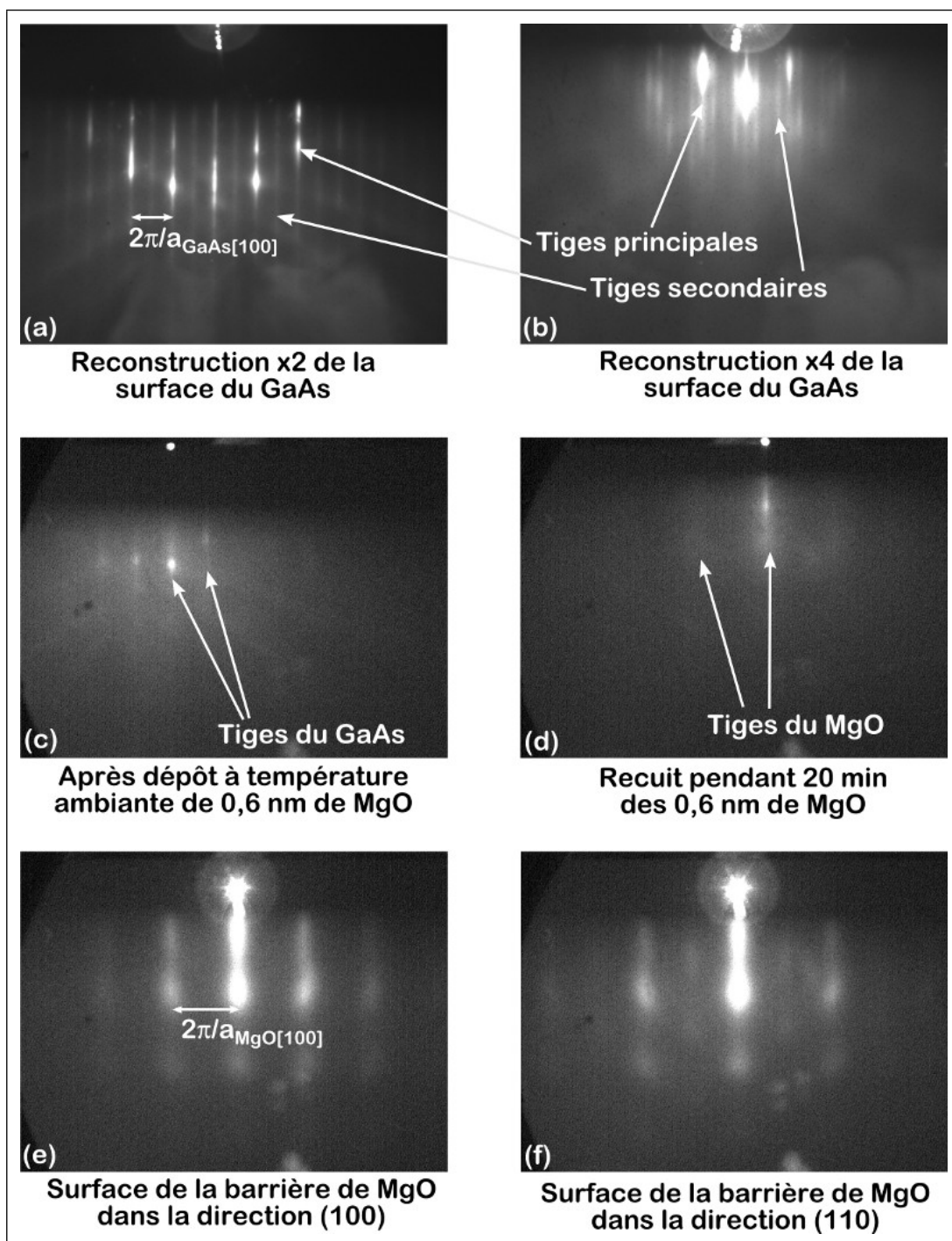
La croissance des 20 Å de la barrière tunnel de MgO se fait donc en trois fois :

- La première étape dure 4 secondes. Elle consiste à déposer à température ambiante un film de MgO d'environ 6 Å– avec une vitesse de croissance de l'ordre de  $1,5 \text{ Å.s}^{-1}$ . En déposant rapidement et à basse température le MgO, on espère former un film continu amorphe sur le GaAs.
- Ce film mince, amorphe mais continu, permet de recuire rapidement l'échantillon sans avoir de soucis de sublimation de l'As. Une montée rapide à  $470^\circ\text{C}$  puis un recuit d'environ 20 minutes permet à la relation d'épitaxie cube sur cube (voir a page 68) de se mettre en place.
- Une fois observée par diffraction RHEED l'apparition de débuts de tiges du MgO, signes d'une amorce de cristallisation de la couche, le reste de la barrière, soit 14 Å, est épitaxié plus lentement, soit environ  $0,5 \text{ Å.s}^{-1}$ . Cette étape de croissance se fait à  $470^\circ\text{C}$ , température pour laquelle les atomes ont une certaine mobilité permettant une bonne cristallisation.

Une fois cette étape réalisée, il convient de faire croître la couche magnétique de fer-platine. La technique utilisée est la même que celle présentée par Pierre de Person dans la croissance des électrodes supérieures de FePt pour les jonctions FePt/MgO/FePt [de Person, 2007]. Trois étapes sont aussi nécessaires pour réaliser cette couche ; les deux canons du bâti d'épitaxie sont utilisés simultanément puisqu'une des étapes se fait en co-dépôt.

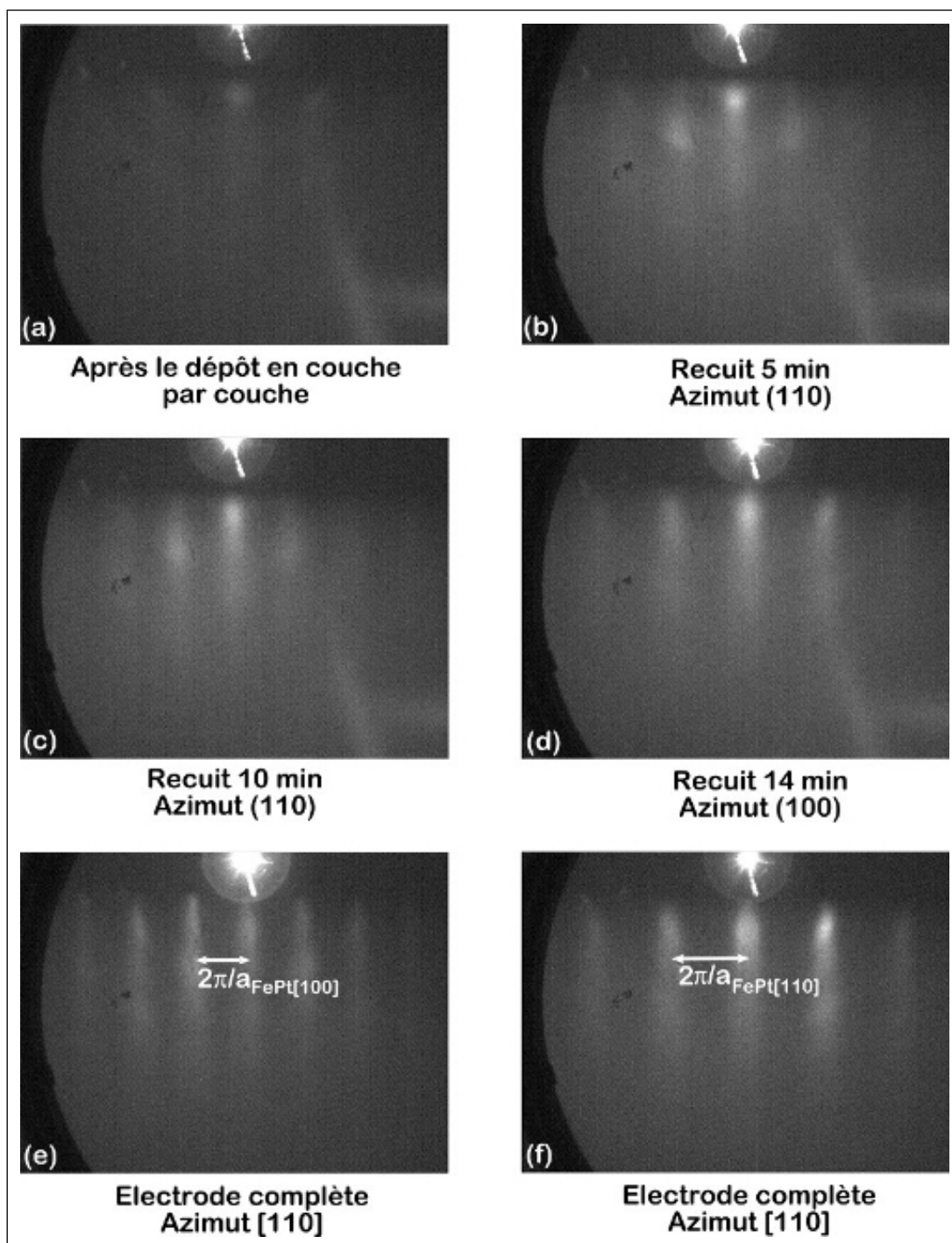
- La première partie du dépôt consiste à amorcer la structure chimiquement ordonnée  $L1_0$ . Pour cela, les caches sont pilotés automatiquement afin de déposer alternativement plan par plan du fer puis du platine. Six bicouches sont ainsi déposées à une température de  $180^\circ\text{C}$ .
- Un recuit d'une vingtaine de minutes à  $450^\circ\text{C}$  permet d'améliorer la cristallinité et la mise en ordre chimique des premiers plans atomiques.
- Le restant de la couche est co-déposé à la même température et à des vitesses inférieures à  $0,2 \text{ MC.s}^{-1}$ . La première étape permet de *forcer* la mise en ordre chimique dans le seul variant perpendiculaire. Si cette étape est correctement réalisée, l'ordre chimique est maintenu lors du codépôt.
- Un capping de platine est éventuellement rajouté à basse température pour prévenir de toute oxydation.

Durant toute la phase de croissance, l'état cristallographique de l'échantillon est observé par diffraction RHEED (voir figure III.11 page suivante), ce qui permet d'ajuster les températures de recuit et de dépôt déterminées empiriquement, afin d'obtenir les couches de la meilleure qualité possible.

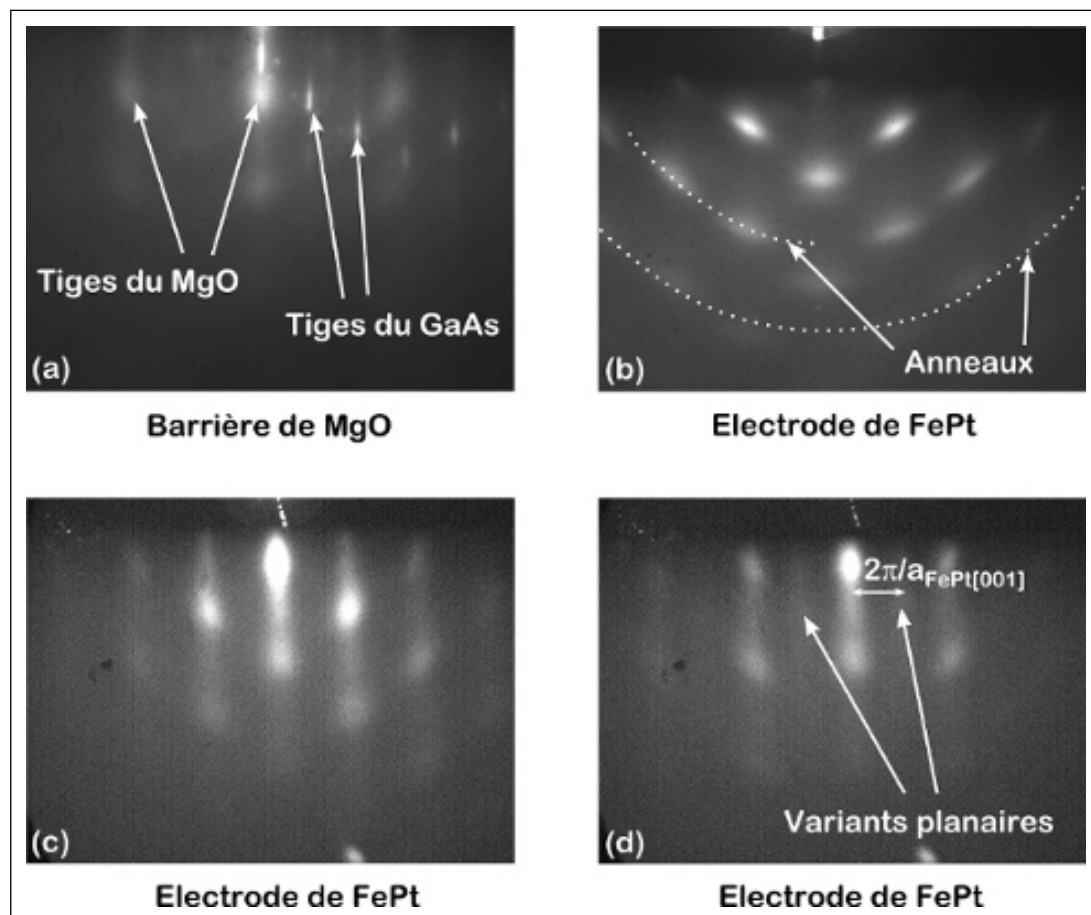


**FIGURE III.11:** Suivi par diffraction RHEED de la croissance du MgO sur GaAs :

- (a) et (b) : Reconstruction (2x4) de la surface de GaAs. Celle-ci se distingue de la reconstruction (4x2) par le fait qu'il manque des tiges secondaires sur l'azimut x4.
- (c) : Après dépôt de 6 Å de MgO, les tiges de GaAs sont encore visibles mais floutées.
- (d) : Recuit à 470°C pendant 20 minutes. On commence à deviner les tiges du MgO
- (e) et (f) : Vues suivant les azimuts (100) et (110) de la barrière de MgO. La croissance du MgO sur GaAs s'accompagne d'une certaine rugosité, ce que montrent les tiges pointées.



**FIGURE III.12:** Suivi par diffraction RHEED de la croissance du FePt sur MgO. Les clichés (a), (b), (c), (d) montrent la cristallisation grâce au recuit des six bicouches déposées couche par couche. (e) et (f) : vues suivant deux azimuts de la couche de FePt. Les tiges sont larges et en forme de V, la cristallinité n'est donc pas parfaite et présente une certaine mosaïcité. En revanche, les tiges ne sont pas pointées, la couche est donc bien bidimensionnelle.



**FIGURE III.13:** Exemples les plus fréquents de défauts observés lors des croissances. Les figures de diffraction du MgO lorsque la recristallisation ne se fait pas correctement ne montrent parfois aucune tâche.

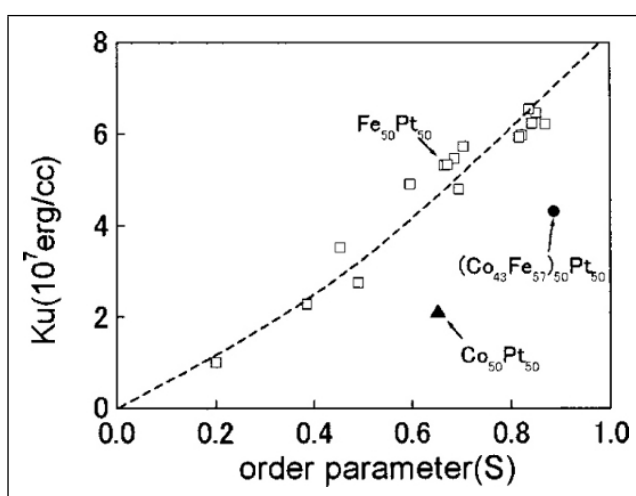
- (a) : Barrière tunnel de mauvaise qualité. Après dépôt des 2 nm de MgO, les tiges du GaAs sont toujours visibles.
- (b) : La figure de diffraction de la surface de FePt forme des anneaux, signe que l'électrode est polycristalline avec des cristaux orientés aléatoirement.
- (c) : La figure de diffraction est pointée, la surface de l'électrode n'est pas bien bidimensionnelle. Ce défaut n'affecte pas forcément les propriétés magnétiques de la couche.
- (d) : La figure de diffraction montre des tiges secondaires. Il s'agit de traces de variants dans le plan, l'électrode ne présentera pas d'anisotropie perpendiculaire.



## 2.2 Propriétés d'injection

### 2.2.1 Propriétés magnétiques de la couche de fer-platine

**a Mise en ordre et propriétés magnétiques** L'électrode de fer-platine doit, pour que son aimantation soit perpendiculaire au plan de la couche, être ordonnée dans la structure  $L1_0$ . Le paramètre d'ordre  $S$  associé à cette structure et défini au paragraphe b page 67 permet de quantifier la mise en ordre de l'alliage. Kanazawa *et al.* [Kanazawa, 2000] ont établi une relation entre le degré d'ordre  $S$  et l'amplitude de l'anisotropie uniaxiale  $K_1$ .



**FIGURE III.14:** D'après [Kanazawa, 2000]. Influence du paramètre d'ordre sur l'anisotropie magnétocristalline à température ambiante pour les couches de FePt et  $Co_xFe_{1-x}Pt$ . Les propriétés magnétiques sont mesurées par magnétomètre à couple de force et le paramètre d'ordre évalué par des mesures de diffraction X. La valeur estimée pour un alliage parfaitement ordonné est  $K_1 \approx 8.10^7 J.m^{-3}$ , ce qui est concordant avec les estimations de Weller *et al.* [Weller, 1999]

Le champ d'anisotropie mesurée sur nos échantillons est de l'ordre de 8 T à 5 K et 5,5 T à 300 K (voir paragraphe c page 78), ce qui donne une évaluation du paramètre d'ordre de nos couche de l'ordre de 0,7.

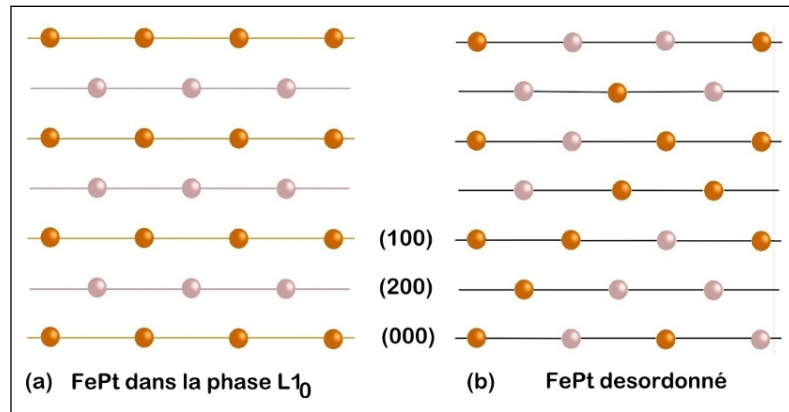
La forte anisotropie structurale de la phase  $L1_0$  le long de l'axe  $c$  – empilement de plans atomiques purs de fer et de platine – et l'environnement particulier de chaque atome dans cette structure qui en découle – chaque atome d'une espèce est entouré de quatre atomes identiques et huit atomes de l'autre espèce, entraînant une forte hybridation des orbitales  $d$  du fer et du platine – ainsi que le fort

couplage spin-orbite des électrons  $d$  du platine conduisent à cette constante d'anisotropie magnétocristalline suffisante pour obtenir des couches minces présentant une rémanence magnétique totale suivant l'axe perpendiculaire [Daalderop, 1991].

La valeur de l'aimantation rémanente, égale à l'aimantation à saturation, trouvée pour nos échantillons à température ambiante est de  $M_S \approx 1200.10^3 \text{ A.m}^{-1}$  contre  $M_S = 1140.10^3 \text{ A.m}^{-1}$  dans la littérature [Weller, 1999]. Le moment magnétique est porté essentiellement par les atomes de fer  $2,93 \mu_B$ , mais il y a aussi un moment magnétique non négligeable porté par les atomes de platine  $0,29 \mu_B$  [Staunton, 2004].

## b Paramètre d'ordre

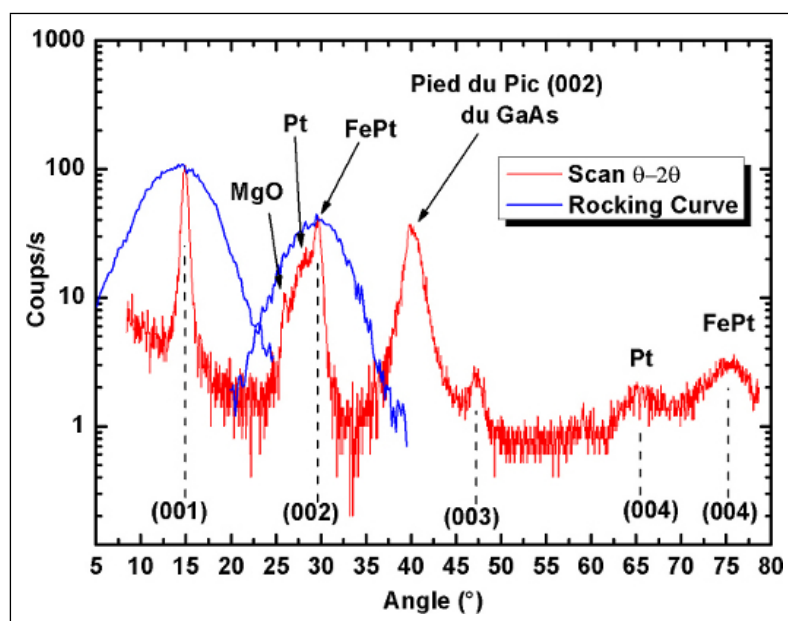
**Mesure du paramètre d'ordre** Une méthode pour estimer le paramètre d'ordre des couches de fer-platine épitaxiées est de faire des mesures de diffraction X. Lorsque la structure est ordonnée, elle est une succession de plans atomiques purs de fer et de platine dont les facteurs de diffusion sont différents. La figure de diffraction montre une tache de diffraction (200) et une tache de diffraction (100) liée à la mise en ordre chimique. Lorsque la structure est parfaitement désordonnée, les plans (100) et (200) sont équivalents. Il n'y a alors plus de tache de diffraction (100). Une estimation du paramètre d'ordre se fait en analysant les intensités relatives de ces deux taches de diffraction.



**FIGURE III.15:** Représentation schématique d'un alliage FePt (a) dans la phase  $L1_0$  et (b) désordonné. Pour une structure ordonnée, les plans (100) et (200) contiennent uniquement du fer ou uniquement du platine. Pour une structure parfaitement désordonnée, ces deux séries de plans sont identiques.

**Données expérimentales** La qualité cristallographique de la couche de fer-platine a été sondée par diffraction X, les différents spectres enregistrés sont résumés figure III.16. La nature exacte de l'empilement est *GaAs* – *MgO* (2 nm) – *FePt* (10 nm) – *Pt* (5 nm), ce qui explique la présence de pics supplémentaires.

Le spectre principal en  $\theta - 2\theta$  montre le pic (002) avec deux épaulements supplémentaires liés au MgO et à la couche de protection de platine. En revanche le pic (001) qui ne traduit que la mise en ordre chimique ne peut être présent pour les autres matériaux. Pour évaluer la mosaïcité de la couche de fer-platine, des spectres en  $\omega$  ont également été réalisés sur les différents pics de diffraction. La largeur à mi-hauteur des pics (001) et (002) est évaluée respectivement à  $7,9^\circ$  et  $6,6^\circ$ . L'analyse des différents pics de diffraction montre qu'il n'y a pas de variants dans le plan, l'orientation de tous les cristallites est perpendiculaire à la surface ce qui explique la forte anisotropie magnétique perpendiculaire.



**FIGURE III.16:** En rouge le scan  $\theta - 2\theta$  de la couche de fer-platine. En bleu un scan en  $\omega$  des pics (001) et (002) associé au FePt. Bien noter que le scan  $\theta - 2\theta$  est en réalité tracé en fonction de  $\theta$  et non  $2\theta$  pour pouvoir être superposé au scan en  $\omega$ .

Le paramètre d'ordre de la couche de FePt dans la phase  $L1_0$  a été estimé à partir du rapport des intensités intégrées des pics de sur-structure et fondamentaux. Ces intensités intégrées ont été corrigées du facteur de Debye-Waller évalué à partir de la donnée des intensités intégrées des pics (002) et (004) d'une part et (001) et (003) d'autre part. D'une part on calcule les intensités intégrées théoriques  $I_{calculée}$  de ces différents pics en prenant comme variable le paramètre d'ordre que

l’on cherche à évaluer. D’autre part on mesure l’intensité intégrée  $I_{mesurée}$  des différents pics mesurés par diffraction X dans le scan  $\theta - 2\theta$ . Cette mesure peut être problématique pour les pics principaux lorsque plusieurs éléments se superposent – le pic (002) du FePt montre par exemple plusieurs pics liés au Pt, au FePt et au MgO.

Le rapport  $\frac{I_{mesurée}}{I_{calculée}}$  décroît à cause du facteur de Debye-Waller lorsque l’ordre des pics augmente. On fait l’hypothèse que la pente de la décroissance est identique pour les pics de diffraction principaux et de sur-structure. Changer la variable *paramètre d’ordre* dans  $I_{calculée}$  permet de faire varier la pente de cette décroissance pour les pics de sur-structure. Pour déterminer le paramètre d’ordre, il suffit alors de trouver la valeur qui ajuste le mieux les deux pentes pour les pics principaux et les pics de sur-structure.

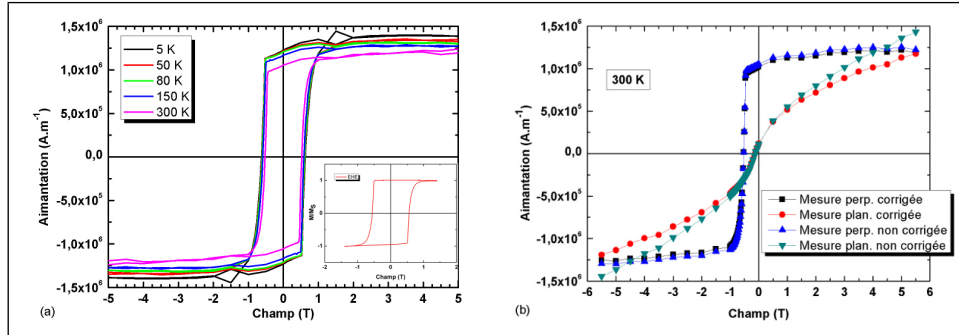
Cette évaluation, bien que peu précise, nous a permis de déterminer un paramètre d’ordre de l’ordre de 0,7 pour le FePt épitaxié dans la structure  $L1_0$  sur MgO sur GaAs.

### c Mesures par SQUID

**Cycle d’hystérésis** Les courbes d’aimantation des couches de fer-platine ont été mesurées par magnétométrie SQUID et sont présentées figure III.17 (a). Une mesure par SQUID permet d’obtenir l’aimantation absolue d’un échantillon. La surface de celui-ci a donc été mesurée pour pouvoir tracer directement l’aimantation volumique de la couche de FePt en fonction du champ magnétique appliqué. Cette technique de mesure présente l’inconvénient de sonder l’aimantation de l’ensemble de l’échantillon, y compris le substrat. Il convient alors de retirer le signal issu de ce dernier, ce qui est aisé lorsqu’il s’agit d’une simple pente diamagnétique. Le signal du substrat peut également présenter un cycle ouvert donnant une perturbation aux faibles champs. Dans la mesure présentée, l’aimantation ne semble pas 100% rémanente à cause de ces perturbations à bas champ. La mesure du cycle d’hystérésis réalisée par Effet Hall Extraordinaire qui ne sonde l’aimantation que de la couche ferromagnétique montre bien que l’aimantation est 100% rémanente.

**Mesure de l’anisotropie** Il existe plusieurs méthodes pour mesurer l’anisotropie d’une couche magnétique. La méthode retenue ici est d’effectuer deux mesures de l’aimantation, une suivant l’axe de facile aimantation et l’autre dans le plan de l’échantillon. La couche magnétique se sature suivant l’axe de difficile aimantation à la valeur du champ d’anisotropie  $H_K$  donné par  $H_K = 2\frac{K_U}{M_S}$  où  $K_U$  est la constante d’anisotropie uniaxiale et  $M_S$  l’aimantation à saturation.

Dans le cas idéal, il suffit de tracer sur un même graphe les cycles d’hystérésis suivant les axes facile et difficile, le champ d’anisotropie est la valeur du



**FIGURE III.17:** (a) Cycle d'hystérésis mesuré par magnétométrie SQUID d'un échantillon de MgO/FePt (10 nm)/Pt. En inset : la mesure par EHE à température ambiante qui montre la rémanence de 100%. (b) Demi-cycles d'hystérésis – corrigés ou non – en configurations planaire et perpendiculaire de MgO/FePt (10 nm)/Pt mesurés par SQUID à température ambiante pour évaluer l'anisotropie de la couche magnétique. L'effet de la correction proposée dans [Stamenov, 2006] est visible.

champ lorsque les deux courbes se rejoignent. Pour cela, il faut savoir soustraire correctement les pentes diamagnétiques lors des mesures, ce qui est évident pour les mesures dans la direction de facile aimantation mais pas dans la direction de difficile aimantation car le champ de saturation est plus élevé que le champ maximal délivré par le SQUID. En pratique la même pente diamagnétique est soustraite pour les deux directions.

Un biais plus difficile à estimer est généré par la taille finie des échantillons. En effet, pour évaluer l'aimantation absolue d'un échantillon lors de la mesure par magnétométrie SQUID, celui-ci est assimilé à un dipôle ponctuel. En réalité, la dimension finie de l'échantillon et sa position par rapport aux bobines de mesures – différente lorsque l'aimantation de l'échantillon est mesurée dans le plan ou hors plan – entraîne une légère surestimation de l'aimantation lorsque celle-ci est perpendiculaire au plan de l'échantillon et une sous-estimation lorsque celle-ci est dans le plan. Les corrections à apporter aux mesures d'aimantation ont été calculées par Stamenov *et al.* [Stamenov, 2006]. L'effet de ces corrections est visible figure III.17 (b) : sans elles, les courbes d'aimantation perpendiculaires et planaires se coupent.

En prenant ces précautions, le champ d'anisotropie des couche 10 nm de FePt à été évalué à 8 T à 5 K et 5,5 T à 300 K.

**d Imagerie MFM-AFM** Après avoir été désaimantés par application d’un champ magnétique d’amplitude décroissante et alternativement positif puis négatif, les échantillons ont été observés par microscopie à force atomique.

L’évaluation de la taille des domaines peut être une bonne indication pour évaluer la qualité des couches de FePt. Comme le montre la figure III.18 page ci-contre, les domaines observés à l’équilibre après croissance sur MgO/GaAs ont une taille de l’ordre de 250 nm. Cette taille est comparable à celle observée par Pierre de Person [Person, 2007] lors de croissances de FePt sur substrat de MgO.

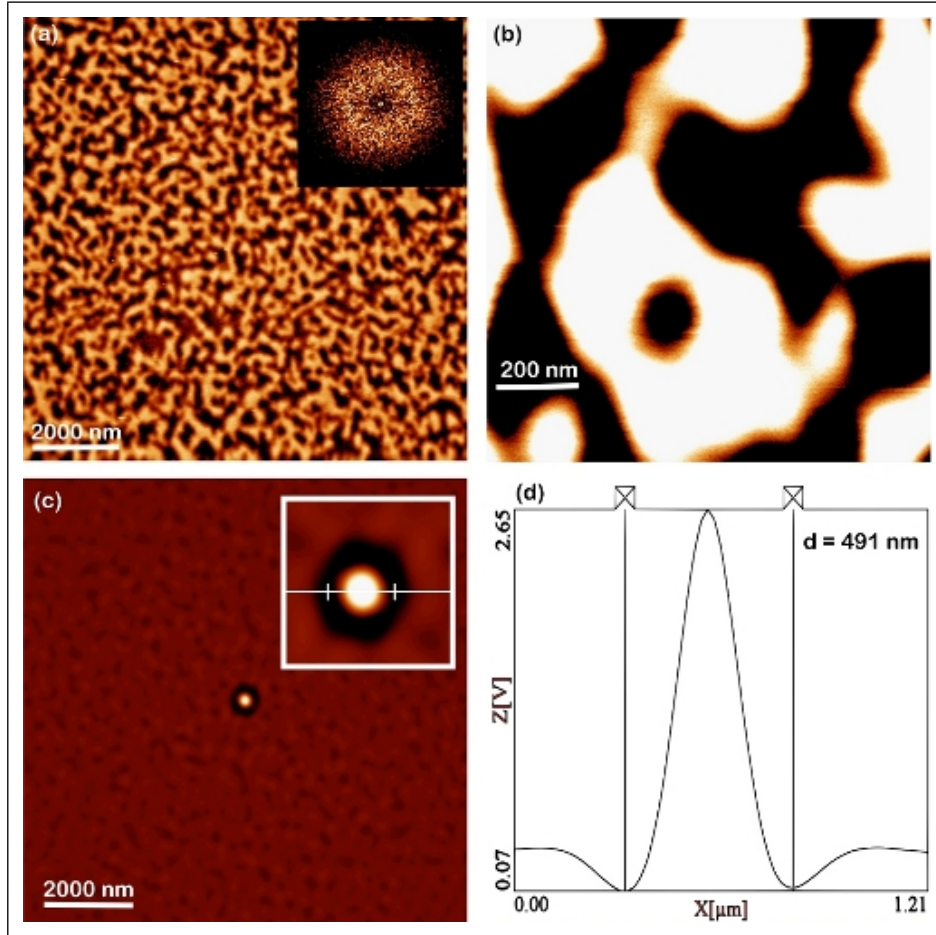
## 2.2.2 Filtrage en spin de l’empilement

Le choix du couple FePt-MgO pour injecter des spins dans le GaAs a initialement été choisi pour ses propriétés d’aimantation et le savoir-faire du laboratoire en termes de croissance épitaxiale. Si les résultats n’ont pas abouti pour les raisons évoquées dans la partie b page 141, il s’est avéré que l’intuition dans le choix des matériaux pour l’injection de spins était bonne, comme le montrent les travaux suivants sur les jonctions tunnel magnétiques *FePt/MgO/FePt* et sur l’injection de spin dans le GaAs [Yoshikawa, 2008] [Taniguchi, 2008] [Sinsarp, 2006].

**a Retour sur les Jonctions tunnel magnétiques FePt/MgO/FePt** Deux papiers sur la magnétorésistance tunnel dans les jonctions FePt/MgO/FePt sont sortis simultanément en novembre 2008. L’équipe de Taniguchi *et al.* [Taniguchi, 2008] a étudié théoriquement le transport dans cette structure grâce à des calculs de structure électronique tandis que le groupe de Yoshikawa a montré une magnétorésistance supérieure à 100% à température ambiante dans des structures entièrement épitaxiées.

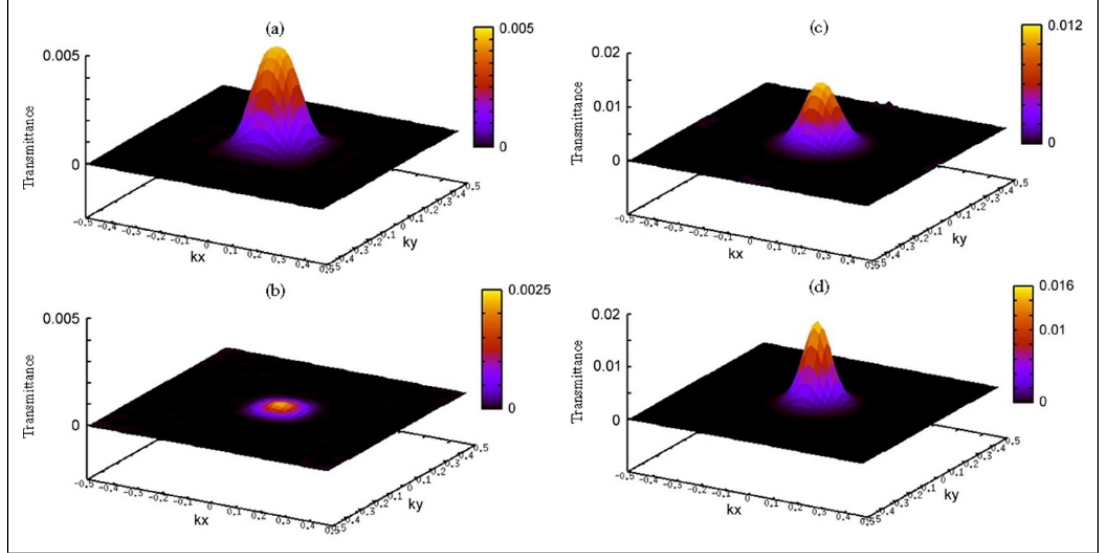
Taniguchi *et al.* ont utilisé des calculs *ab-initio* pour déterminer la structure de bande des électrodes de fer-platine dans la direction [001]. Butler *et al.* [Butler, 2001] ayant montré que ce sont les électrons de la bande symétrique  $\Delta_1$  qui participent majoritairement au transport tunnel à travers une barrière de MgO, ils ont montré que cette bande coupait le niveau de Fermi de l’alliage métallique massif aussi bien pour le canal de spin majoritaire que minoritaire – au contraire des électrodes composées uniquement de fer par exemple. Cette propriété ne semble ne pas permettre d’atteindre des valeurs de magnétorésistance tunnel importantes ; cependant elle ne prend pas en compte l’interface métal-barrière isolante, interface également étudiée par Taniguchi *et al.* et qui se révèle décisive dans ce problème.

Le point crucial pour l’injection est de savoir quels sont les atomes de l’électrode métallique en contact avec le MgO dans ce dispositif. Le FePt en structure  $L1_0$  étant une succession de plans atomiques purs de fer et de platine, l’interface est occupée uniquement par des atomes d’une sorte. La figure III.19 page 82 montre



**FIGURE III.18:** Images par microscopie à force atomique d'une couche de FePt épitaxiée sur une barrière isolante de  $\text{MgO}_{2 \text{ nm}}$  sur GaAs. **(a)** Image  $10 \times 10 \mu\text{m}$  montrant des domaines entrelacés isotropes, en inset la transformée de Fourier de cette image donne un anneau : il n'y a pas de direction privilégiée pour les parois de domaines. **(b)** Image  $1 \times 1 \mu\text{m}$  : détail de domaines. **(c)** : image d'autocorrélation de l'image **(a)**, la partie centrale zoomée en inset. Sur ce zoom, la marque blanche est la coupe réalisée sur l'image **(d)** : la distance entre les deux minima correspond à la taille moyenne de deux domaines. Les domaines ont donc une taille caractéristique de 250 nm.

que le coefficient de transmission tunnel à travers la barrière de MgO varie très fortement pour le canal de spin minoritaire suivant la nature chimique du plan atomique à l'interface.



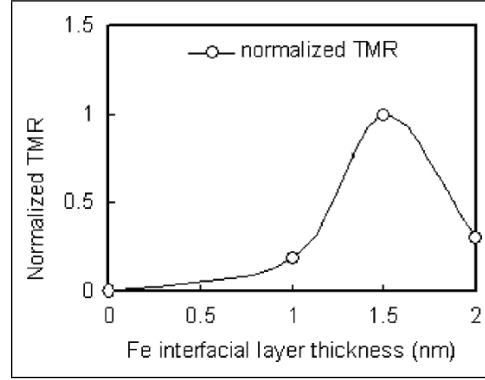
**FIGURE III.19:** D'après [Taniguchi, 2008]. Coefficient de transmission tunnel entre deux électrodes de FePt en configuration parallèle d'aimantation séparées par cinq plans atomiques de MgO pour le canal de spin majoritaire (a) et minoritaire (b) lorsque l'interface électrode-barrière est occupé par un plan de Fer, pour le canal de spin majoritaire (c) et minoritaire (d) lorsque l'interface électrode-barrière est occupé par un plan de platine

Cette propriété liée à une localisation bien plus importante des électrons *d* du fer que du platine entraîne que ces structures peuvent présenter des valeurs de magnétorésistance supérieures à 380% pour les électrodes *terminées*-fer contre seulement 70% pour les électrodes *terminées*-platine. Ce résultat semble promettre des possibilités d'injection de spin intéressantes puisque les croissances réalisées sur MgO sur substrat de GaAs commencent par un plan de fer et que Taniguchi *et al.* ont montré que cette configuration était plus stable que celle avec un plan de platine à l'interface.

Parallèlement à ce travail théorique, Yoshikawa *et al.* [Yoshikawa, 2008] ont étudié la magnétorésistance de la structure  $L1_0 - \text{FePt} / \text{MgO} / \text{Fe}(t_{\text{Fe}}) / L1_0 - \text{FePt}$  en fonction de l'épaisseur  $t_{\text{Fe}}$  de fer insérée. La courbe III.20 page suivante montre que cette structure présente une magnétorésistance supérieure à 100% à température ambiante lorsque l'épaisseur de fer est de 1,5 nm. Cette propriété qui semble proche de l'explication apportée par Taniguchi *et al.* est en fait liée à des problèmes



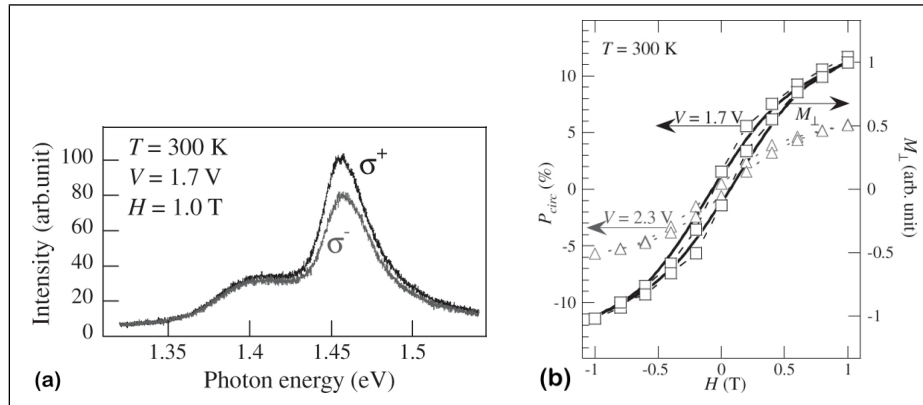
de croissance, la différence de paramètre de maille entre MgO et FePt entraînant une croissance en îlots de la barrière isolante, annihilant toute magnétorésistance si la couche de fer n'est pas présente.



**FIGURE III.20:** D'après [Yoshikawa, 2008]. Courbe de magnétorésistance à température ambiante de la structure  $L1_0$ -FePt/MgO/Fe  $t_{Fe}$ /L1<sub>0</sub>-FePt en fonction de l'épaisseur  $t_{Fe}$  de fer insérée.

**b Résultats de la littérature sur l'injection depuis le FePt vers le GaAs** A notre connaissance, il n'y a à ce jour qu'un seul groupe ayant démontré l'injection de spins depuis une électrode de FePt vers une structure à base de semi-conducteurs III-V. Sinsarp *et al.* [Sinsarp, 2006] ont utilisé un puits quantique de GaAs inséré dans de l'AlGaAs pour détecter des spins injectés via une barrière isolante de MgO. La polarisation de la lumière mesurée à température ambiante est de 11,5 % (voir figure III.21 page suivante) sous un champ de 1 Tesla contre seulement environ 1 % en absence de champ magnétique. Cette nécessité d'appliquer un champ magnétique est due aux propriétés de la couche de FePt utilisée. La figure III.21 page suivante montre que celle-ci présente une rémanence de l'ordre de quelques pourcents, ce qui explique le faible rendement d'injection en rémanence.

En utilisant des structures émettrices de lumière à gap direct et confinant les porteurs dans un puits, la polarisation de la lumière détectée est égale à celle du courant juste avant la recombinaison (voir le paragraphe b page 128). Le courant injecté est donc polarisé à 11,5 % sous champ magnétique de 1 Tesla, Sinsarp *et al.* annoncent une efficacité d'injection à température ambiante, définie par  $\eta = P_{spin}/P_{FePt}$ , d'environ 29 % où  $P_{FePt} \approx 40\%$  est la polarisation de leur FePt massif. Cette polarisation est évaluée à partir de mesures de diffraction X pour estimer le paramètre d'ordre de leur structure et ensuite en faisant l'interpolation linéaire du rapport entre paramètre d'ordre et polarisation en spin au niveau de Fermi de l'alliage proposé par Moriyama *et al.* [Moriyama, 2004].



**FIGURE III.21:** D'après [Sinsarp, 2006] : analyse de la polarisation de la lumière émise par une structure  $\text{FePt/MgO/AlGaAs/GaAs}_{\text{qw}}$ . (a) Courbes d'électroluminescence analysées en polarisation à température ambiante. (b) Dépendance de la polarisation de la lumière émise en fonction du champ magnétique appliqué pour une tension d'injection de 1,7 V (carrés) et 2,3 V (triangles). La ligne continue est la courbe d'aimantation de la couche de FePt mesurée à température ambiante.

Cette estimation de l'efficacité d'injection est grossière – elle ne prend pas en compte les effets d'interface vus au paragraphe a page 80 – et la valeur indiquée n'est sans doute pas maximale puisque le champ appliqué n'est pas suffisant pour saturer la couche de FePt comme le montre la figure III.21, mais elle montre que les candidats que nous avons retenus pour l'injection dans le GaAs étaient prometteurs.

### 3 $\text{CoPt-Al}_2\text{O}_3$ pour l'injection dans le silicium

L'étude de l'injection de spins dans le silicium nous a conduit à chercher un nouvel injecteur pour ce matériau. Si la croissance de structures épitaxiées du type  $\text{MgO-FePt}$  dans la phase  $L1_0$  sur silicium est réalisable – voir par exemple les travaux de Boubeta *et al.* [Boubeta, 2003] –, sa mise au point risquait de prendre trop de temps et sans garantie du résultat final, à savoir une couche à aimantation perpendiculaire. En effet, si le GaAs se prête bien au transfert dans le bâti d'épitaxie métaux grâce à la possibilité de désorber in-situ l'Arsenic amorphe de protection et obtenir ainsi une surface parfaitement propre, lisse et reconstruite, cette technique n'est pas envisageable pour le silicium. La désoxydation d'une surface de Si a lieu à des températures supérieures à  $1000^\circ\text{C}$ .

L'épitaxie sur silicium nécessite donc une préparation chimique de la surface poussée et une introduction dans le bâti sous vapeur d'acide fluorhydrique, ce qui était difficilement réalisable sans une salle de chimie adaptée pour ces transferts.

L'option choisie a été de développer la croissance d'injecteurs par pulvérisation cathodique, cette technique présentant l'avantage d'être simple et rapide à mettre en place. Les croissances ainsi réalisées ne possèdent évidemment pas les qualités structurales et donc de filtrage en spin des échantillons réalisés par épitaxie par jets moléculaires.

Plusieurs structures avec une aimantation perpendiculaire ont été testées pour l'injection de spins, mais une seule a donné des résultats, la couche Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co/Pt recuite présentée dans la partie 3.1. Les autres structures seront mentionnées dans la section 3.3 page 109. Les paramètres importants étant que les couches ainsi fabriquées possèdent une barrière tunnel et que l'aimantation de ces couches soit perpendiculaire à forte rémanence.

### 3.1 Croissance par Pulvérisation Cathodique

Les électrodes retenues pour réaliser l'injection de spin nous ont été proposées par Bernard Rodmacq du laboratoire SPINTEC du CEA-Grenoble. Ces couches magnétiques, constituées d'un film de cobalt puis d'un film de platine directement déposés sur l'Alumine servant de barrière tunnel, ont la particularité de voir leur aimantation s'orienter hors du plan après recuit. Elles ont été développées par cette équipe dans le cadre de travaux sur les jonctions tunnel magnétiques [Nistor, 2009] [Rodmacq, 2009]. La découverte de cette propriété pour les couches Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co/Pt vient après l'étude de l'aimantation de la structure inverse Pt/Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> au cours des travaux de thèses de S. Monso [Monso, 2002] et A. Manchon [Manchon, 2008].

#### 3.1.1 Dépôt des injecteurs

**a Préparation des substrats** Les substrats de silicium sont recouverts d'une couche d'oxyde déposé thermiquement ou natif, épais de quelques nanomètres. Cet oxyde protège bien la surface du silicium mais il convient de l'en débarrasser avant dépôt. Pour cela, les substrats sont trempés dans un bain d'acide fluorhydrique concentré à 10 % pendant quelques secondes puis rincés à l'eau déionisée pendant environ 15 minutes. Ils sont ensuite séchés grâce à un jet d'azote et introduits dans le bâti de pulvérisation cathodique, le délai entre leur mise à l'air et l'introduction dans le bâti étant inférieur à 5 minutes. Morita *et al.* [Morita, 1990] ont montré que l'épaisseur d'oxyde natif immédiatement présent sur silicium après exposition à l'air à température ambiante est d'environ 2 Å – respectivement 4 Å pour le silicium fortement dopé *n* –, cette épaisseur n'augmentant pas durant les cent premières minutes d'exposition. Le délai entre le séchage des échantillons et leur introduction dans le bâti est donc raisonnable.

**b Croissance par pulvérisation cathodique** La croissance de l'injecteur alumine/cobalt/platine se fait par pulvérisation cathodique. Deux étapes sont nécessaires pour cette croissance, le premier stade a lieu dans le bâti de croissance d'agrégats du laboratoire qui dispose d'un magnétron pour le dépôt d'alumine, la suite du dépôt se fait dans le bâti de pulvérisation cathodique dédié aux métaux du laboratoire. Ce paragraphe résume les protocoles expérimentaux utilisés pour obtenir les injecteurs ; une caractérisation détaillée des stades de croissance sera explicitée au paragraphe 3.1.3 page 91.

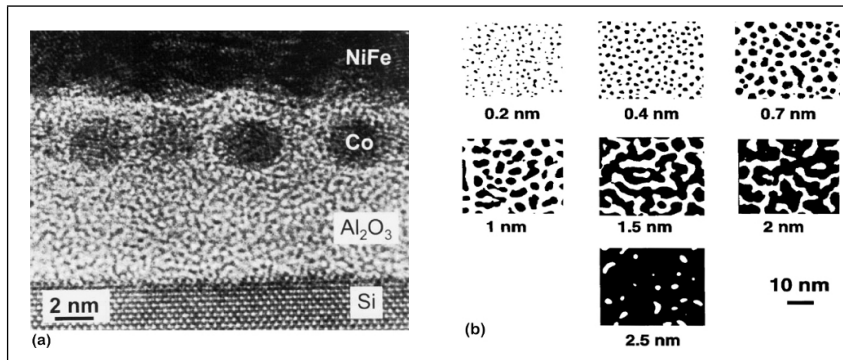
**Croissance de la barrière tunnel** Après préparation chimique de la surface des échantillons, ceux-ci sont introduits dans le sas du bâti dans lequel règne une pression  $P \approx 10^{-5}$  mbar, puis dans la chambre de dépôt. La pression de travail partielle en argon vaut  $P_{\text{argon}} \approx 3.10^{-4}$  mbar et la puissance de l'alimentation vaut  $P_W = 100$  W. Sous ces conditions, la vitesse de dépôt de l'alumine est assez lente, de l'ordre de  $0,15 \text{ \AA.s}^{-1}$ . Cette vitesse est contrôlée avant et après dépôt à l'aide d'une balance à quartz. L'évaporation de la cible d'alumine fondue se fait grâce à un plasma d'argon alimenté par un magnétron radio-fréquence.

L'observation des électrodes par Microscopie Electronique à Transmission réalisée assez tardivement a montré que les épaisseurs d'alumine présentes dans les échantillons n'étaient pas conformes à ce qui était prévu. L'épaisseur d'une couche estimée à 20 nm a été mesurée par réflectivité des rayons X ; cette mesure a donné une épaisseur réelle de 32 nm, ce qui est conforme avec les observations de microscopie. Il existe donc une erreur systématique lors des mesures d'épaisseur avec la balance à quartz. La nature de cette erreur est inconnue : la densité de l'alumine déposée par pulvérisation cathodique est trop faible sans que l'on en comprenne la raison. Cette observation ayant été faite tardivement, les épaisseurs d'alumine mentionnées dans ce manuscrit se comprennent comme les épaisseurs mesurées par la balance à quartz. Ce ne sont donc pas les valeurs réelles.

**Croissance de l'électrode métallique** Après dépôt de la barrière d'alumine, les échantillons sont introduits dans le bâti de pulvérisation cathodique pour le dépôt des métaux. Les électrodes métalliques sont généralement déposées à travers un masque solide, disque métallique présentant des trous de  $500 \mu\text{m}$  de diamètre. Pour tenter d'améliorer la collection de lumière, certains dépôts ont été réalisés pleine plaque et les échantillons ont ensuite été mis en forme par lithographie optique et gravure (voir paragraphe 3.1.2 page 88).

La pression dans le bâti de quelques  $10^{-7}$  mbar avant dépôt est ramenée à une pression partielle de  $2,7.10^{-3}$  mbar d'argon pour créer le plasma. Les alimentations des cibles sont pilotées en courant, le cobalt est déposé à la vitesse de  $1 \text{ \AA.s}^{-1}$ , le platine à  $2 \text{ \AA.s}^{-1}$ .

L'étude détaillée de la croissance du cobalt sur alumine nécessiterait des moyens d'analyse dont ne dispose pas le bâti de pulvérisation utilisé. Mais cette croissance a été étudiée dans des conditions similaires et de nombreuses analyses existent dans la littérature. Maurice *et al.* [Maurice, 1999] ont observé que la différence d'énergie de surface entre les deux matériaux induisaient une croissance en îlots du cobalt sur l'alumine amorphe. Cette croissance de type *Volmer-Weber* explique les propriétés rencontrées (voir c page 100), à savoir un comportement superparamagnétique lorsque la couche de cobalt déposée est faible – les agrégats de cobalt ne coalesçant pas encore, ils forment des particules de petite taille possédant cette propriété. Dans le cas des croissances de Maurice *et al.*, la couche de cobalt devient continue à partir de 3,5 Å déposés, ce qui peut être légèrement différent pour nous compte-tenu des vitesses de dépôt plus élevées. Le recuit induisant une migration importante du cobalt dans le platine (voir la partie 3.1.3 page 91), il tend à uniformiser le dépôt. Des discontinuités dans la couche magnétique ne sont pas visibles lors de l'imagerie par MFM (voir figure III.27 page 94).



**FIGURE III.22:** D'après [Maurice, 1999]. (a) Coupe TEM d'une multicouche Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(5 nm)/Co (0,7 nm)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(3 nm)/NiFe (3,6 nm). On distingue bien les îlots sphériques de cobalt que forme la couche de 0,7 nm. (b) Image TEM binarisée dans le plan de la couverture par le cobalt d'une couche d'alumine. L'épaisseur indiquée est celle que ferait la couche si la matière était uniformément déposée. L'absence de trous dans le cobalt s'observe pour une épaisseur de 3,5 nm.

Jensen [Jensen, 1999] a étudié et simulé des modèles simples de croissance pour des matériaux se déposant en formant des agrégats. Dans l'hypothèse où l'évaporation des atomes déposés à la surface est assez lente – la longueur de diffusion des atomes avant ré-évaporation est grande devant la distance moyenne entre les agrégats – l'épaisseur de la couche à saturation  $e_{sat}$  varie comme

$$e_{sat} \sim \left( \frac{D}{F} \right)^{1/7} \quad (\text{III.37})$$

ou  $D$  est le coefficient de diffusion des atomes à la surface et  $F$  le flux de matière incidente. Les observations de Maurice *et al.* montrées sur la figure III.22 page précédente ont été réalisées pour des dépôts de cobalt à une vitesse de  $0,114 \text{ \AA.s}^{-1}$ . Une vitesse de croissance plus rapide, de l’ordre de  $1,05 \text{ \AA.s}^{-1}$  dans notre cas conduit à une épaisseur de saturation de la couche plus faible, environ 2,5 nm contre 3,5 nm.

**c Recuit** L’aimantation des échantillons juste après dépôt est dans le plan (voir partie 3.2.1 page 97). Pour redresser cette aimantation, les échantillons sont recuits dans un four sous vide, la pression est de l’ordre de  $10^{-5}$  mbar. L’étude de l’influence des temps et températures de recuit n’a pas été menée de manière exhaustive, les paramètres employés donnant satisfaction. Les échantillons sont recuits à une température de  $400 \text{ }^\circ\text{C}$  pendant 90 minutes. La montée en température est rapide – environ  $50 \text{ }^\circ\text{C/min}$  – contrairement au refroidissement : le four reste sous vide, il faut donc environ 4 heures pour revenir à la température ambiante.

### 3.1.2 Mise en forme des échantillons

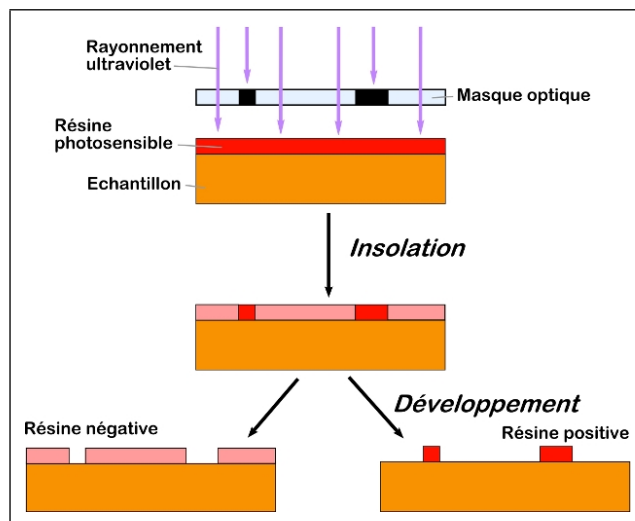
Les mesures électro-optiques sur les échantillons nécessitent d’avoir des surfaces suffisantes pour contacter électriquement les électrodes mais des motifs fins pour permettre de collecter un maximum de lumière et de limiter les effets d’éventuels *pinholes* de la barrière tunnel. La lithographie optique permet de réaliser des motifs dont les dimensions caractéristiques font quelques dizaines de micromètres. Dans les paragraphes suivants seront présentés les différents stades qui permettent de passer d’un dépôt pleine plaque de l’électrode métallique à la structure en peigne quelquefois utilisée pour l’injection de spins dans le silicium – la plupart des dépôts ont été réalisés à travers un masque solide permettant de se passer des étapes de lithographie optique. Les étapes de mise en forme présentées ici ont également été utilisées dans une version un peu plus sophistiquée pour les échantillons *GaAs/MgO/FePt* : plus d’étapes de lithographie et dépôts supplémentaires d’isolants et d’amenées de courants mais le principe reste le même.

**a Lithographie optique** Deux approches sont possibles pour la lithographie optique, la lithographie *positive* – présentée dans la suite – pour laquelle le motif souhaité est dessiné en positif sur l’échantillon et la lithographie *négative* pour laquelle le motif est présent en négatif : l’échantillon est couvert de résine sauf au niveau du dessin.

La première étape de lithographie consiste à déposer un film uniforme de résine photosensible sur l'échantillon, film dont l'épaisseur doit être bien définie. L'échantillon est pour cela recouvert de résine et placé sur une plaque tournante. De nombreuses études ont permis de calibrer les épaisseurs de résine déposée suivant la viscosité de celle-ci et les vitesses et temps de rotation de la plaque. Pour la résine *S1813* utilisée, 60 secondes de rotation à 4000 tr/min permettent d'obtenir un film de 1,3  $\mu\text{m}$  d'épaisseur.

L'échantillon est alors déposé sur une plaque chauffante – environ 100 °C pendant 90 secondes – pour durcir la résine et évaporer le solvant avant la phase d'insolation. L'insolation de la résine est l'étape cruciale des procédés de lithographie. Elle permet de modifier les propriétés de solubilité de la résine aux endroits où elle est soumise à un rayonnement ultraviolet. L'échantillon est donc placé dans un insolateur sous un masque optique en verre dont les motifs à reproduire sont opaques à ce rayonnement. Il est soumis à la lumière pendant quelques secondes. Les parties insolées deviennent alors solubles dans un bain développeur approprié. Les dessins du masque optique sont alors reproduits en résine sur l'échantillon. Il est alors prêt à être gravé, la résine jouant le rôle de masque de gravure.

En lithographie négative, ce sont les parties non insolées qui sont solubles dans le bain développeur ce qui permet d'obtenir les motifs en négatif.



**FIGURE III.23:** Principales étapes de lithographie optique positive et négative.

**b Gravure argon** La lithographie permet d'obtenir un masque de gravure pour mettre en forme les injecteurs. La barrière tunnel et l'électrode ferromagnétique étant déposées pleine plaque, il convient de graver la partie métallique en arrêtant

la gravure dans la barrière tunnel afin de localiser la zone d'injection au motif dessiné par lithographie et d'empêcher le contactage direct du semi-conducteur en cas de redépôt sur les flancs de gravure.

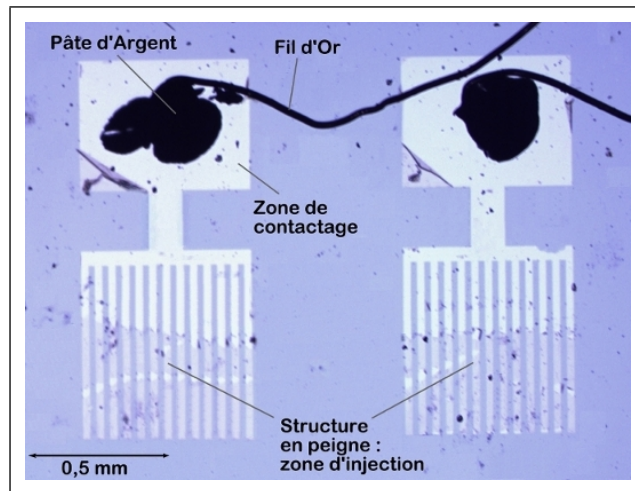
La gravure utilisée pour les électrodes  $Al_2O_3/Co/Pt$  est une gravure physique à l'argon. La nature des matériaux fait que l'attaque de la partie métallique est beaucoup plus rapide – de l'ordre de  $1,5 \text{ Å.s}^{-1}$  pour une puissance de 300 W – que celle de l'alumine – environ  $0,4 \text{ Å.s}^{-1}$  pour une même puissance. Il est alors aisé de calibrer les temps de gravure pour pouvoir l'arrêter lorsque tout le métal est consommé. La détection de fin de gravure la plus simple étant de contrôler visuellement l'apparence de la surface de l'échantillon, l'apparence métallique étant très marqué pour le platine. Une mesure de hauteur de marche, par exemple par AFM permet de vérifier la calibration. Après la gravure, il convient de nettoyer l'échantillon des restes de résines là où elle n'a pas été insolée en utilisant un bain d'acétone.

Le principe de la gravure à l'argon est d'attaquer physiquement la surface de l'échantillon. Le gaz est introduit à une pression de  $1,2 \cdot 10^{-4}$  mbar puis est ionisé en étant traversé par un faisceau d'électrons. Les électrons sont émis par un filament chauffé et accélérés entre une anode et une cathode. Leurs collisions avec les atomes d'argon conduisent à la formation d'un plasma. Des grilles chargées électriquement, situées à la sortie du canon à électrons, confinent le plasma et permettent l'extraction des ions et leur accélération vers la cible. Un filament circulaire chauffé encerclant le faisceau d'ions permet alors de le neutraliser. Les atomes d'argon neutres projetés sur l'échantillon le gravent sur toute la surface. Seules les zones protégées par la résine photo-sensible ne sont pas soumise au bombardement ionique. Les épaisseurs à graver étant faibles – quelques nanomètres – devant celle de la résine, les zones protégées ne sont pas attaquées.

D'autres bâtis et techniques de gravure sèche ont été employés au cours de cette thèse pour les échantillons  $GaAs/MgO/FePt$ , notamment des gravures ionique réactives à base de gaz chlorés –  $BCl_3$  et  $Cl_2$ , le  $Cl_2$  attaquant chimiquement le FePt. La gravure ionique réactive permet de limiter les redépôts sur les flancs de gravure, redépôts qui peuvent dans certains cas court-circuiter les barrières tunnel.

**c Contactage** Le contactage des échantillons est toujours une étape délicate lors des mesures électriques. La technique la plus couramment utilisée, la microsoudure, n'est pas applicable pour nos échantillons car les contacts ne sont pas déportés et les électrodes d'injection trop fines. La microsoudure détruirait donc mécaniquement les structures lors du contactage. Il n'est pas souhaitable dans ce cas d'augmenter l'épaisseur de métal au-dessus de la couche de CoPt pour deux raisons : premièrement la croissance ayant lieu sur l'alumine, l'accroche de celle-ci est insuffisante et la microsoudure arracherait toute la couche métallique, électrode comprise et de plus cela empêcherait de faire les mesures magnétiques des couches par effet Kerr.





**FIGURE III.24:** Photographie au microscope optique des structures utilisées pour l'injection de spins dans le silicium. Cet échantillon a déjà été mesuré – d'où les nombreuses poussières –, les points de contacts en pâte d'argent et les fils d'Or servant à amener le courant sont bien visibles. Les contrastes sont dus aux variations de réflectivité entre la zone métallique non gravée et l'alumine.

Les échantillons ont donc été contactés manuellement en déposant à l'aide d'une pointe une goutte de pâte d'argent sur la surface de l'électrode et sur les pistes du cryostat puis en joignant les deux à l'aide d'un fil d'or de quelques dizaines de micromètres de diamètre. Cette opération est réalisée sous binoculaire et en prenant soin de mettre à la masse les différents éléments pour ne pas endommager la jonction tunnel. Il est possible de contacter manuellement des objets d'environ 500  $\mu\text{m}$  de diamètre.

Le contact arrière est assuré en collant à la laque d'argent l'échantillon sur le porte-échantillon métallique du cryostat.

### 3.1.3 Caractérisations structurales

**a Microscopie Electronique en Transmission** Pour comprendre l'effet du recuit sur les couches de cobalt-platine, elles ont été observées par microscopie électronique à transmission par Christophe Arm du laboratoire LEMMA – *Laboratoire d'Etude des Matériaux par Microscopie Avancée* – du CEA-Grenoble INAC/SP2M. Les échantillons pour cette étude ont été préparés classiquement mais sans désoxydation du substrat avant dépôt de l'alumine. L'empilement avant recuit est donc, depuis la surface, Pt (3 nm)/Co (1,6 nm)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (2 nm)/SiO<sub>2</sub> (2 nm)/Si.

Ils ont été observés en coupe ; pour cela ils sont d'abord amincis à la polisseuse manuelle puis par PIPS – *Precision Ion Polishing System* – ou grâce à une méthode manuelle de précision, le tripode complet afin d'obtenir des lames d'une épaisseur de quelques dizaines de nanomètres.

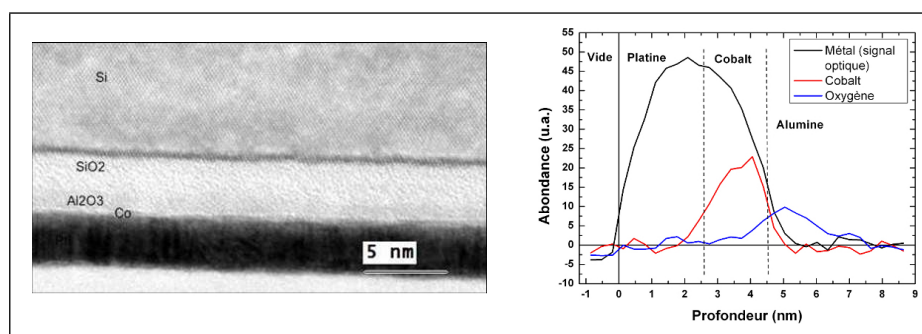
Les deux images de gauche des figures III.25 et III.26 ont été obtenues par cette méthode, ce sont des images en haute résolution sur lesquelles on voit bien le cristal du silicium, les couches métalliques, ainsi que les couches amorphes d'oxyde. Sur certaines images avec un grossissement moins important, on distingue également la rugosité liée au puits de SiGe (voir a page 151). De nombreuses images avec des techniques et des préparations d'échantillons différentes – dark field ou bright field, échantillon aminci au PIPS ou au tripode complet – ont été réalisées pour distinguer le cobalt du platine et comprendre la formation éventuelle d'un alliage, mais sans succès.

Les courbes de droite des figures III.25 page suivante et III.26 page ci-contre sont des profils chimiques réalisés sur les échantillons juste après dépôt et recuits par spectroscopie EELS. La technique de spectroscopie de pertes d'énergie d'électrons EELS – *Electron Energy Loss Spectroscopy* – permet de mesurer localement la composition chimique [Egerton, 2009]. Elle a permis de montrer que pour un échantillon brut, le cobalt était localisé au contact de l'alumine alors que pour un échantillon recuit le cobalt a diffusé dans toute l'électrode. Il y a donc probablement la formation d'un alliage de CoPt. Il semble aussi y avoir diffusion de l'oxygène et une zone de recouvrement du cobalt et de l'oxygène assez importante. Mais les caractéristiques des raies du cobalt comme la forme, le décalage ou encore le rapport entre la hauteur des raies indiquent qu'il n'y a pas de formation d'oxyde de cobalt lors du recuit.

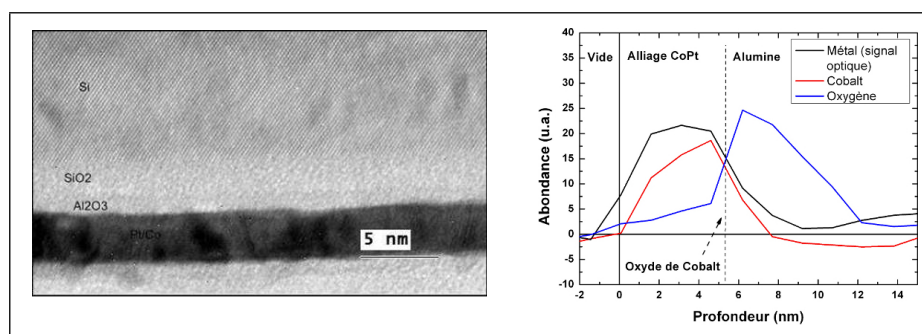
Il faut donc bien noter une limite de cette technique qui est liée à l'épaisseur de la zone sondée – identique à celle de l'échantillon soit la dizaine de nanomètre. L'analyse locale de la composition chimique est en fait une moyenne de la composition sur l'épaisseur observée de l'échantillon. En raison de la rugosité de ceux-ci, les limites de zones ne sont pas abruptes, ce qui est visible par exemple sur les profils de l'échantillon brut. Il est difficile de placer exactement les frontières entre matériaux.

Sur les profils chimiques, les intensités des différentes courbes ne sont pas normalisées et correspondent à des valeurs arbitraires. L'intensité correspondant au métal est une lecture optique sur une image TEM réalisée en champ sombre où seuls les éléments lourds sont visibles. Les courbes noires ne sont donc pas réalisées par spectroscopie EELS.

**b Microscopie à Force Magnétique** Pour caractériser un dépôt, il est souvent utile d'en observer la surface en Microscopie à Force Atomique. Vu les épaisseurs



**FIGURE III.25:** (a) Image par Microscopie Electronique à Transmission d'un empilement Pt/Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si après dépôt. (b) Profil chimique de cet empilement par Spectroscopie EELS.



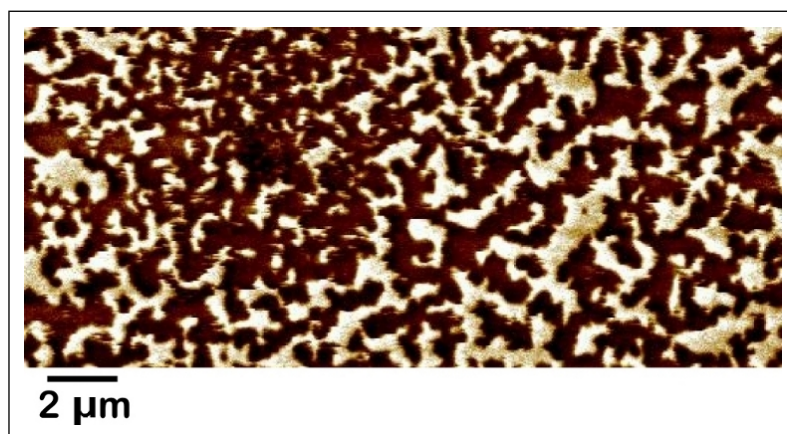
**FIGURE III.26:** (a) Image par Microscopie Electronique à Transmission d'un empilement Pt/Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si recuit pendant 1h30 à 410°C. (b) Profil chimique de cet empilement par Spectroscopie EELS.

déposées pour cette électrode et la rugosité du substrat sur lequel elles sont déposées, nous n'avons rien pu tirer de ces observations. En revanche l'image III.27 en Microscopie à Force Magnétique réalisée sur une grande surface montre que la taille des domaines varie de manière significative en fonction de la zone observée.

La variation de la taille des domaines peut être liée à une inhomogénéité de l'épaisseur du cobalt déposé :

- Si le flux de Co n'est pas homogène, il peut y avoir des variations d'épaisseurs, mais cette hypothèse semble très peu probable, les variations de tailles de domaines ont lieu sur des échelles trop petites.
- Maurice *et al.* ont montré que le dépôt de Cobalt ne formait pas un film homogène [Maurice, 1999]. Mais l'échelle de taille de la rugosité qu'ils observent est de l'ordre de la dizaine de nanomètres ce qui ne correspond pas non plus aux observations.

Il semble donc peu probable que la variation de taille des domaines soit liée à une fluctuation de l'épaisseur du cobalt. Cette variation de taille est vraisemblablement due à une inhomogénéité lors du recuit de la couche magnétique ou à une zone présentant une impureté avant le dépôt. En revanche il n'y a pas de direction préférentielle pour les domaines magnétiques.



**FIGURE III.27:** Image 20x10 μm par Microscopie à Force Magnétique d'une couche  $Al_2O_3/Co/Pt$  recuite à 410°C désaimantée. La taille des domaines observés sur cette image varie de 100 nm à 1 μm.

**c Diffraction X** L'effet du recuit sur les couches  $Al_2O_3/Co/Pt$  est très important puisqu'il suffit pour changer la direction de facile aimantation de la couche magnétique (voir b page 98). Pour comprendre quelle est l'influence de ce recuit sur la structure des échantillons puis quelle est l'influence de la structure cristallographique sur l'aimantation, des échantillons ont été analysés en diffraction X par

Stéphanie Pouget du SGX – *Service Général des Rayons X* – au CEA-Grenoble INAC/SP2M.

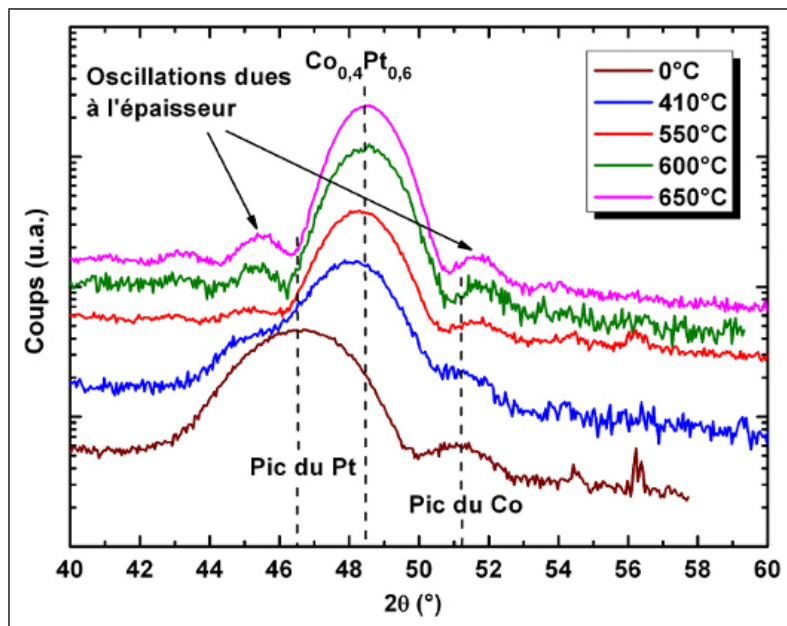
Pour cette étude, un injecteur Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co/Pt a été déposé sur du silicium désoxydé. Après dépôt, cet échantillon a été clivé en plusieurs morceaux qui ont chacun été recuits à des températures différentes mais suivant exactement la même procédure – temps de pompage avant recuit, rampe de montée et descente en température – pour assurer le maximum de reproductibilité. Stéphanie Pouget a ensuite réalisé des spectres  $\theta - 2\theta$  sur les couches pour identifier les phases cristallographiques présentes dans ces couches et en  $\omega$  pour sonder la qualité cristalline de la couche.

Les principaux résultats sont présentés sur les figures III.28 page suivante et III.29 page suivante. Le spectre en  $\theta - 2\theta$  montre la disparition des pics liés au cobalt et au platine et l'apparition d'un pic intermédiaire lorsque la température de recuit augmente. L'application de la loi de Vegard donne un alliage Co<sub>0,4</sub>Pt<sub>0,6</sub>, ce qui est cohérent avec les épaisseurs déposées. Pour les températures de recuit les plus élevées, de 550°C à 650°C, seul le pic de l'alliage est visible. La forme d'un pic dans ces conditions de diffraction est un sinus cardinal dont l'écartement entre les différents maxima dépend de l'épaisseur de la couche. Ainsi pour les hautes températures l'épaisseur de l'alliage est comprise entre 4,6 et 5 nm, ce qui correspond bien à l'épaisseur totale de métal déposée.

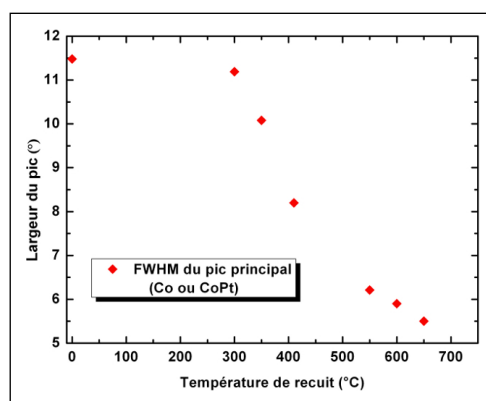
Quelques points ne sont pas encore parfaitement élucidés sur ce graphique : le décalage de la position exacte du pic de l'alliage CoPt en fonction de la température de recuit. Le comportement monotone de cette évolution ne semble pas être compatible avec un simple problème d'alignement de l'expérience. L'ajustement de la courbe de la couche recuite à 410°C doit encore être amélioré pour mieux comprendre les différents pics.

La figure III.29 page suivante présente la largeur à mi-hauteur du pic principal du spectre en  $\omega$  des couches en fonction du recuit qu'elles ont subi. Pour les échantillons faiblement recuits – 0°C, 300°C et 350°C –, le pic principal est celui du cobalt. Pour les températures plus importantes il s'agit du pic de l'alliage cobalt-platine. L'évolution de la largeur de ces pics montre que les cristallites tendent à s'orienter de la même manière dans la direction (111) lorsque la température de recuit augmente.

Pour conclure sur cette étude de diffraction X sur les couches de cobalt-platine, il a été montré que le recuit conduisait à un alliage proche de Co<sub>0,4</sub>Pt<sub>0,6</sub> avec disparition des couches de cobalt et de platine. La qualité de l'alliage formé s'améliore avec la température de recuit et la texture (111) apparaît de plus en plus marquée. En revanche aucune mise en ordre chimique dans l'alliage n'a été observée. Le lien entre la formation d'un alliage, l'amélioration de sa texturation et les propriétés magnétiques n'a pas été clairement décrit dans ce manuscrit, il fait l'objet d'un article en préparation.



**FIGURE III.28:** Scan  $\theta - 2\theta$  de la couche de CoPt en fonction de la température de recuit. Les scans sont décalés pour faciliter la lecture.

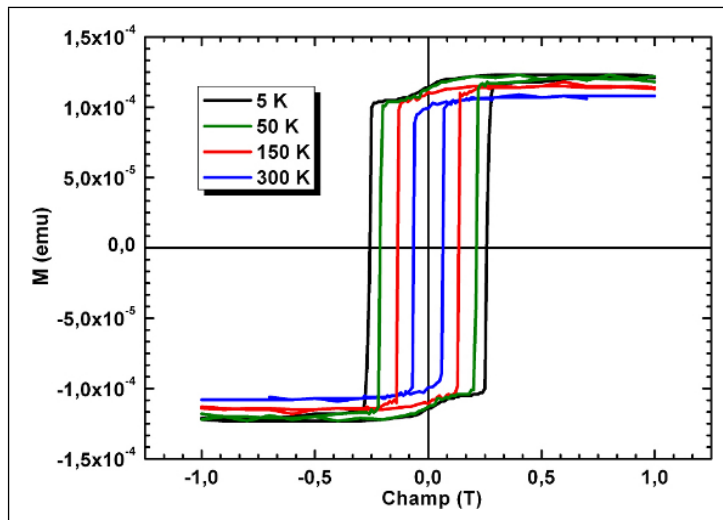


**FIGURE III.29:** Largeur à mi-hauteur – FWHM – du pic principal du spectre en  $\omega$  de la couche de CoPt.

## 3.2 Propriétés d'injection

### 3.2.1 Propriétés magnétiques

**a Propriétés des couches utilisées pour l'injection de spins** Les électrodes ferromagnétiques qui ont servi pour l'injection de spin dans le silicium sont constituées de 1,6 nm de cobalt et 3 nm de platine. Après recuit à 410°C pendant 90 minutes, elles forment un alliage désordonné de cobalt-platine. Comme le montrent les courbes III.30, ces électrodes ont une aimantation perpendiculaire au plan de la couche qui est 100% rémanente. L'aimantation est mesurée à température ambiante et correspond à l'aimantation du cobalt massif. Les raisons d'une telle anisotropie pour ces couches sont invoquées au paragraphe a page 50.

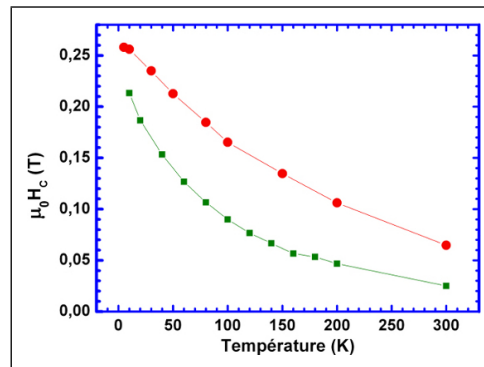


**FIGURE III.30:** Mesures SQUID réalisées sur un échantillon 10x5 mm<sup>2</sup> de Co (1,6 nm)/Pt (3 nm) recuit à 410°C. Les cycles d'hystérésis ont été corrigés de la pente diamagnétique du substrat. En revanche le signal du substrat de silicium – épais de 500 μm – qui présente un cycle légèrement ouvert est encore visible aux faibles champs et n'est pas enlevé. La couche de cobalt-platine présente bien une rémanence de 100% comme le montrent par exemple les mesures réalisées par effet Kerr (voir III.32 page 99).

La reproductibilité des propriétés magnétiques entre les échantillons n'est pas très bonne. Il semble que la vitesse de dépôt par pulvérisation cathodique n'est pas stable. Les paragraphes c page 100 et d page 102 montrent l'extrême sensibilité des propriétés magnétiques de la couche de CoPt en fonction des épaisseurs déposées. Des variations significatives ont lieu pour des écarts de 1 Å de cobalt ce qui correspond environ à 6% de l'épaisseur déposée. Or il est probable que la vitesse

d'évaporation varie de plus de 10% suivant les dépôts. La vitesse de dépôt des métaux est régulièrement vérifiée grâce à une balance à quartz mais étalonnée par des mesures de réflectivité des rayons X que très occasionnellement. Dans tout ce manuscrit, les épaisseurs données à titre indicatif sont celle programmées en fonction du temps et de la vitesse de dépôt mais elles ne correspondent pas nécessairement aux épaisseurs réelles – données impossibles à obtenir.

Les différents cycles pour les mêmes épaisseurs de cobalt annoncées varient donc significativement d'un échantillon à l'autre. Cela n'a pas posé de problème pour l'étude de l'injection de spins, les couches magnétiques étant caractérisées à chaque fois avant l'étude optique. Pour les cycles présentés dans cette section, les épaisseurs annoncées sont celles qui ont été programmées lors du dépôt, ce ne sont pas nécessairement les épaisseurs réelles. La comparaison des cycles présentés sur les différentes figures n'a pas de sens et il n'est pas étonnant que pour des conditions de croissance et de recuit a priori semblables les résultats diffèrent. Par exemple, la figure III.31 montre que pour deux échantillons avec les mêmes épaisseurs de métal et un recuit identique – température et temps de recuit – l'écart entre les valeurs des champs coercitifs est compris entre 15% et 60% suivant la température. En revanche il est possible de comparer les différents cycles présentés sur le même graphique, les dépôts ayant été faits simultanément.



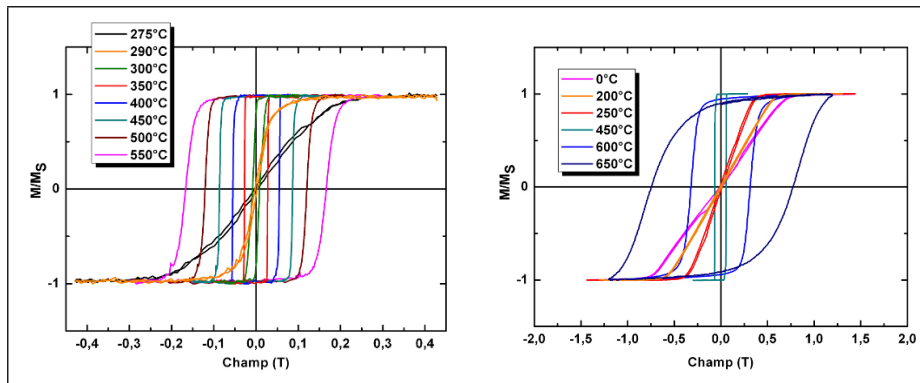
**FIGURE III.31:** D'après [Grenet, 2009]. Evolution du champ coercitif de deux échantillons de  $\text{Co}_{1,6\text{nm}}\text{Pt}_{3\text{nm}}$  recuits en fonction de la température. La différence entre les deux échantillons montre les problèmes de reproductibilité dans la croissance des échantillons.

Pour un même échantillon, la variation du champ coercitif en fonction de la température est aussi très importante – environ 80% entre 5 K et la température ambiante.

**b Effet de la température de recuit** Le paramètre le plus facile à modifier pour faire varier les propriétés magnétiques de la couche de CoPt est la température de



recuit de la couche. Pour cela un échantillon a été préparé dans les conditions standards sur alumine. Une fois les dépôts réalisés, l'échantillon a été clivé en plusieurs morceaux qui ont subi des traitements thermiques similaires : 90 minutes de pompage du four à 40°C puis 1 minute à 115°C pour enlever les traces d'eau et enfin le recuit pendant 90 minutes à la température de consigne. Le four n'a été remis à l'air que lorsque la température est inférieure à 50°C pour ne pas apporter une éventuelle oxydation supplémentaire post-recuit. Les différents cycles d'hystérésis sont présentés figure III.32.



**FIGURE III.32:** Cycles d'hystérésis d'une couche Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – Co – Pt recuite à différentes températures. Pour des températures de recuit intermédiaires (a), les cycles ont été mesurés par effet Kerr polaire. Pour des couches non recuites ou au contraire très fortement recuites (b), les cycles ont été mesurés par Effet Hall Extraordinaire. Bien noter que pour la couche recuite à 650°C, l'aimantation n'est probablement pas saturée et la normalisation n'est réalisée que pour le confort de lecture.

L'effet du recuit est notable, par son rôle sur l'hybridation des orbitales de l'oxygène et du cobalt ainsi que sur la mise en ordre de l'alliage cobalt-platine<sup>2</sup>, il fait augmenter l'anisotropie perpendiculaire de la couche magnétique. A température ambiante, l'aimantation devient perpendiculaire et 100% rémanente pour des températures de recuit proches de 300°C. Puis le champ coercitif de la couche augmente avec la température de recuit jusqu'à environ 600°C avec une aimantation qui reste 100% rémanente. Au delà la rémanence commence à chuter mais le champ coercitif continue à augmenter. Il n'est pas possible d'attribuer l'augmentation de la valeur du champ coercitif uniquement au renforcement de l'anisotropie de la couche, d'autres facteurs rentrant en jeu pour cette propriété, comme par exemple les défauts susceptibles de permettre la nucléation de domaines mais aussi de piéger les parois magnétiques.

2. Un article est en préparation sur cette étude. L'effet du recuit sur les propriétés structurales de l'alliage sera évoqué plus en détail grâce à des analyses de diffraction X et des observations TEM.

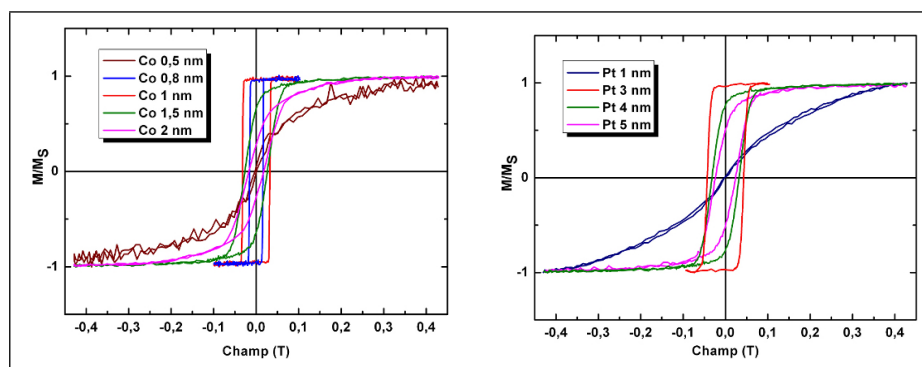
Pour des températures de recuit comprises entre 300°C et 350°C, le retournement de l'aimantation est assez brusque – sur moins de 50 mT. Plus la température augmente plus le retournement est étalé sur une grande plage de champs. Un retournement brusque est généralement le signe que le champ de nucléation est plus important que le champ de propagation des parois. Les champs de nucléation et de propagation ne sont pas des paramètres intrinsèques du matériau magnétique, mais dépendent des *défauts* de la couche – joints de grain, défauts cristallins, ... – où l'anisotropie est plus faible. Lorsque le retournement de l'aimantation est plus lent, le facteur limitant est la propagation des parois qui se piègent sur les défauts. Un retournement étalé sur une grande plage de champs peut aussi être la signature de l'effet du champ démagnétisant. Dans ce cas, l'épaisseur de la couche est trop faible pour que ce soit observable et il n'y aurait pas de dépendance suivant la température de recuit de la largeur du retournement.

Même si cette étude n'est pas pour l'instant assez complète pour expliquer les raisons des variations des propriétés magnétiques de la couche  $Al_2O_3/Co/Pt$  en fonction de la température de recuit, elle donne une idée de la richesse de ce système. En faisant simplement varier ce paramètre, il est possible d'obtenir une couche magnétique à aimantation planaire, puis à aimantation perpendiculaire avec un champ coercitif ajustable entre 0 tTesla –  $T_{recuit} = 300^\circ C$  – et plus de 0,5 Tesla –  $T_{recuit} > 600^\circ C$ . Il est évident qu'un tel système pourrait également être utile dans d'autres études que pour l'injection de spins.

**c Effet de l'épaisseur de cobalt** Le second paramètre à étudier dans ces couches est l'influence de l'épaisseur des couches métalliques. Une étude complète de ces influences aurait pris beaucoup de temps et n'était pas primordiale dans le cadre de cette thèse. Les quelques échantillons réalisés permettent de se faire une idée des phénomènes mis en jeu.

Des échantillons avec des épaisseurs de 0,5 à 2 nanomètres de cobalt ont été préparés dans des conditions similaires puis recuits simultanément à 410°C pendant 90 minutes. L'étude de l'influence de l'épaisseur du cobalt est moins évidente à réaliser que celle du recuit. En effet il est nécessaire de faire croître plusieurs échantillons. Or il est manifeste que les dépôts par pulvérisation cathodique sont très sensibles aux conditions initiales dans le bâti, et entre autre à un éventuel dépôt antérieur.

Le protocole utilisé pour se soustraire au maximum de l'effet des différents dépôts a été de commencer par évaporer du cobalt et du platine pendant plusieurs minutes caches fermés afin d'avoir les mêmes conditions initiales pour tous les échantillons. Ensuite six échantillons sont réalisés avec des épaisseurs respectives de cobalt de 1,5 nm puis 0,5 nm, 0,8 nm, 1 nm, 2 nm et à nouveau 1,5 nm. Les couches supérieures de platine étant déposées au fur et à mesure. En comparant les



**FIGURE III.33:** Effet des épaisseurs des couches de Co et Pt sur l'aimantation des couches de CoPt. Cycles d'hystérésis mesurés par effet Kerr polaire (a) de couches Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co ( $t_{Co}$ )/Pt (3 nm) en fonction de  $t_{Co}$  l'épaisseur de cobalt et (b) de couches Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co (1,5 nm)/Pt ( $t_{Pt}$ ) en fonction de  $t_{Pt}$  l'épaisseur de platine. Bien noter que pour les courbes avec 0,5 nm de Co de la figure (a) et avec 1 nm de Pt de la figure (b), les aimantations ne sont probablement pas saturées et les normalisations ne sont réalisées que pour le confort de lecture.

cycles mesurés sur le premier et le sixième échantillon, il est possible de déterminer si les dépôts successifs ont influé les uns sur les autres.

Lorsque la couche déposée de cobalt est trop faible, celui-ci forme des îlots (voir b page 86). Après encapsulation des îlots dans le platine puis recuit, ceux-ci forment des agrégats superparamagnétiques à température ambiante<sup>3</sup>. Lorsque le film de cobalt devient continu – à partir de 0,8 à 1 nm déposé –, la couche devient ferromagnétique et l'aimantation est perpendiculaire. L'anisotropie perpendiculaire diminue<sup>4</sup> ensuite avec l'épaisseur de cobalt déposée. Cette diminution peut s'interpréter comme la compétition entre l'anisotropie de forme qui varie en  $M_S^2$  (voir le paragraphe 1.1.2 page 45) et qui tend à coucher l'aimantation dans le plan et l'anisotropie liée à l'interface cobalt-Oxygène qui ne dépend que des atomes placés à l'interface. Lorsque l'épaisseur de cobalt augmente, l'aimantation de la couche augmente et l'anisotropie de forme prend le pas sur celle d'interface : aux grandes épaisseurs de cobalt, l'aimantation redevient à nouveau planaire.

Pour affiner cette étude, il faudrait étudier simultanément l'effet du recuit et de l'épaisseur de cobalt, car le rôle joué dans l'anisotropie par la formation d'un alliage semble important. Or lorsqu'on augmente l'épaisseur de cobalt, on diminue l'effet de l'anisotropie d'interface mais il est également possible – hypothèse non

3. Les courbes présentées ici ne sont pas la signature certaine du super-paramagnétisme mais sont concordantes avec les résultats obtenus par Bernard Rodmacq du laboratoire SPINTEC au CEA-Grenoble/INAC qui a déjà étudié ces structures.

4. Cette affirmation n'est pas démontrée. Au vu des mesures réalisées et de la forme des cycles d'hystérésis, il est raisonnable de penser que l'effet est dû à l'anisotropie perpendiculaire.

vérifiée – que pour le recuit effectué l'alliage ne se forme pas sur l'ensemble de la couche.

**d Effet de l'épaisseur du platine** L'influence de l'épaisseur du platine est également un paramètre intéressant à étudier. La quantité de platine va influencer sur l'alliage formé avec le cobalt et donc sur les propriétés magnétiques. Le protocole pour que les échantillons soient comparables est le même que celui utilisé pour l'étude de l'influence de l'épaisseur du cobalt. Des échantillons avec des épaisseurs de 1, 3, 4 et 5 nm de platine ont été élaborés, les cycles d'hystérésis de ces couches sont présentés au (b) de la figure III.33 page précédente.

L'analyse de l'effet de l'épaisseur de platine montre que l'anisotropie perpendiculaire de la couche magnétique diminue avec l'augmentation de la quantité de platine déposée lorsque cette épaisseur est suffisante. En revanche, pour une épaisseur de platine de 1 nm l'aimantation reste planaire. Cette observation peut sembler contradictoire avec l'hypothèse d'une anisotropie perpendiculaire pilotée principalement par l'interface cobalt-alumine. Effectivement, cette hybridation d'orbitales est insuffisante pour redresser l'aimantation à cause de l'absence de couplage spin-orbite dans ces matériaux. L'ajout de platine qui possède un fort couplage spin-orbite est donc nécessaire pour obtenir une couche à aimantation perpendiculaire. Une autre hypothèse est également envisageable : une couche de 1 nm de platine peut être insuffisante pour protéger efficacement la couche de cobalt et celui-ci s'oxyde par la surface avant le recuit empêchant ainsi l'obtention de propriétés magnétiques satisfaisantes.

Au-delà de 1 à 2 nm de platine déposé, l'anisotropie de la couche magnétique diminue avec l'épaisseur de platine. Cette observation confirme donc en partie l'origine interfaciale de l'anisotropie perpendiculaire puisque l'augmentation du volume de la couche magnétique diminue cette anisotropie. Mais cette diminution d'anisotropie peut aussi s'interpréter comme étant liée à la diminution de la richesse relative du cobalt dans l'alliage formé. D'une part l'hybridation des orbitales du cobalt avec celle de l'oxygène est sans doute moins efficace si la richesse en cobalt diminue, d'autre part la stœchiométrie dans l'alliage joue sans doute un rôle dans l'anisotropie volumique d'origine magnétocristalline, même si cet effet est difficilement quantifiable avec les mesures réalisées.

L'augmentation de l'épaisseur de la couche de platine ne permet en revanche pas de faire disparaître le magnétisme de la couche de CoPt, quelle que soit l'épaisseur du platine – une trop grande dilution des atomes de cobalt dans une matrice de platine aurait pu conduire à ce résultat. Un échantillon *Co* (1,6 nm)/*Pt* (200 nm) a ainsi été réalisé puis recuit à 420°C pendant 90 minutes. Les cycles d'hystérésis de cette couche ont été mesurés par magnétométrie SQUID, l'épaisseur du platine empêchant de réaliser des mesures par effet Kerr. Les courbes ne sont pas présentées

ici, mais cette couche possède bien une aimantation perpendiculaire 100% rémanente à basse température, le cycle d'hystérésis n'a en revanche pas été mesuré à température ambiante.

### 3.2.2 Transport

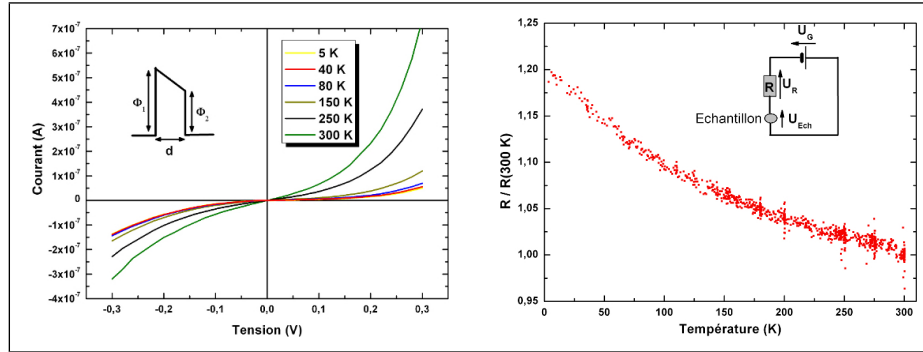
**a Transport Tunnel** Le régime de transport entre l'électrode métallique ferromagnétique et le canal semi-conducteur est un paramètre important pour expliquer l'éventuelle polarisation en spin du courant injecté. La taille des plots utilisés est un paramètre critique de cette étude puisqu'il est difficile d'obtenir une couche isolante fine sur des tailles caractéristiques bien supérieures à la centaine de nanomètres. Or les plots créés par les masques solides font 700  $\mu\text{m}$  de diamètre. Il convenait donc de s'assurer que ce type de barrière pouvait permettre un transport tunnel sur des surfaces aussi étendues.

Il existe trois critères dits *critères de Rowell*<sup>5</sup> servant à prouver que le régime de transport principal est le transport tunnel. Le premier de ces critères est une dépendance de la conductance de la barrière exponentielle avec l'épaisseur. Ce critère n'a pu être testé. Les autres critères s'analysent à partir des caractéristiques courant-tension d'une jonction. La conductance  $G(V) = \frac{dI}{dV}$  doit pouvoir être ajustée par un modèle simple, modèle de Simmons [Simmons, 1963] dans le cas d'une barrière symétrique ou modèle de Brinkman [Brinkman, 1970] pour une barrière asymétrique. Enfin, le dernier critère qu'il faut vérifier est que la dépendance de la résistance à tension nulle de la barrière en fonction de la température est faible mais de type isolant – c'est à dire que la résistance décroît avec la température.

La complexité de la structure complète utilisée pour l'injection ne permet pas de mesurer des caractéristiques courant-tension discriminantes pour identifier le régime de transport entre l'électrode et le semi-conducteur. La présence d'une jonction  $p-i-n$  entraînant de trop fortes non linéarités dans cette caractéristique. Il a fallu pour faire cette étude remplacer le substrat *SiGe QW* par un simple substrat de silicium dopé  $n^+ = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  sur lequel, après désoxydation, de l'alumine a été déposée pleine plaque. La croissance des plots de cobalt-platine puis le recuit de l'échantillon ont été réalisés dans des conditions exactement similaires à celles utilisées lors de la croissance des échantillons conçus pour l'étude de l'injection de spins.

L'étude de la caractéristique courant-tension et de la résistance à tension nulle se font entre un contact pris sur le plot et la face arrière de l'échantillon collé à la laque d'argent sur la masse du banc de mesure. Pour assurer un contact ohmique en face arrière, une électrode de titane-or est déposée. Après recuit cet empilement fait un contact parfaitement ohmique grâce au fort dopage de la couche de silicium.

5. On pourra trouver une description de ces critères bien détaillée dans [Hanbicki, 2003] et [Jönsson-Åkerman, 2000].

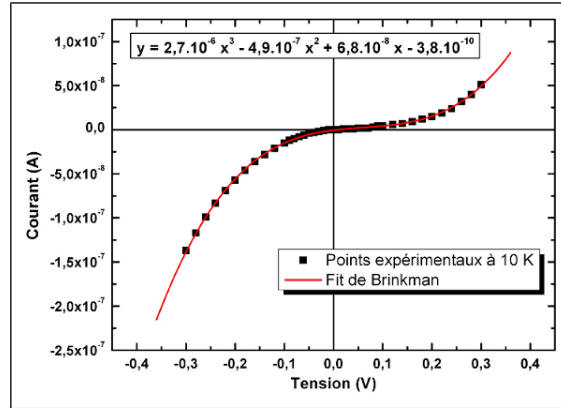


**FIGURE III.34:** (a) Caractéristiques  $I(V)$  des empilements  $Pt/Co/Al_2O_3/Si\ n^+$  en fonction de la température. (b) Evolution de la résistance de la barrière en fonction de la température pour une tension de consigne  $U_G$  de 10 mV.

Les mesures des caractéristiques courant-tension se font à l'aide d'une alimentation de tension *Keithley 2400* permettant simultanément de lire le courant débité. Le montage est donc extrêmement simple puisqu'il suffit de connecter le plot en face avant et la face arrière de l'échantillon à l'alimentation de tension. Pour ne pas endommager la barrière tunnel, le plot sur lequel est effectuée la mesure n'est pas déconnecté aux changements de température. Cinq plots ont été contactés et testés à température ambiante avant d'effectuer l'étude en température sur un plot unique. Sur ces cinq plots, un seul ne présentait pas une caractéristique courant-tension convaincante. Il est donc raisonnable de penser que le régime de transport prédominant est le même sur la majorité des plots.

Les caractéristiques  $I(V)$  ont été tracées à différentes températures, certaines sont présentées au (a) de la figure III.34. Il est possible d'ajuster ces courbes expérimentales avec le fit de Brinkman *et al.* [Brinkman, 1970] pour une barrière non-symétrique comme schématisée dans ce graphe. Les paramètres importants sont  $d$  l'épaisseur de la barrière,  $\Phi$  sa hauteur et  $\Delta\Phi = \Phi_1 - \Phi_2$  son asymétrie. La figure III.35 page ci-contre montre l'ajustement des points expérimentaux de la caractéristique courant-tension par un polynôme du troisième degré. A partir des coefficients de ce polynôme, on peut déduire une épaisseur et une hauteur de barrière théorique.

Les courbes ont été ajustées sur la plage de tension variant de -0,3 V à 0,3 V. La masse effective pour la barrière d'alumine a été prise égale à la masse de l'électron libre. Les valeurs obtenues pour l'épaisseur de barrière varient de 3,85 nm à 5 K à 3,60 nm à 300 K ce qui est cohérent avec les 3,2 nm déposés. En revanche les hauteurs de barrière estimées, comprises entre 6,5 et 6,7 eV sont supérieures aux valeurs attendues – entre 1 eV et 3 eV pour de l'alumine amorphe [Rottländer, 2002] – et les valeurs de l'asymétrie  $\Delta\phi$  ne sont pas exploitables et



**FIGURE III.35:** Ajustement de la caractéristique courant-tension d'un empilement Pt/Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Si  $n^+$  par un polynôme d'ordre 3 en accord avec le fit de Brinkman [Brinkman, 1970].

varient considérablement avec la température – de -37 eV à 5 K à +25 eV à 300 K. Il faudrait affiner les paramètres d'ajustement de la courbe et étudier la variation du niveau de Fermi du silicium dopé  $n^{++6}$  pour pouvoir exploiter correctement ces valeurs. Mais il faut noter que cet ajustement est bon sur toute la plage des températures étudiée, ce qui confirme le second critère de Rowell.

Le montage réalisé pour vérifier le troisième critère de Rowell est schématisé au (b) de la figure III.34 page précédente. La détection synchrone est utilisée comme générateur de tension ; elle fixe une tension sinusoïdale  $U_G = 10$  mV à une fréquence de 1 kHz. La résistance utilisée pour le montage vaut  $R = 43$  k $\Omega$ . Ce montage permet d'obtenir la résistance de l'échantillon à tension nulle et donc de tracer la dépendance de cette résistance en fonction de la température. Travailler avec une détection synchrone permet d'améliorer considérablement le rapport signal sur bruit et de travailler avec des tensions très faibles – la tension appliquée sur l'échantillon est inférieure à 10 mV qui est le point mesuré le plus faible lors des caractéristiques I(V) – et donc pour lesquelles l'approximation linéaire reste acceptable. Pour se convaincre de la validité de cette approche, différentes mesures de  $R_{Tension\ nulle}$  ont été réalisées à différents zooms sur la caractéristique courant-tension, c'est à dire pour différentes valeurs de tension délivrées par la détection synchrone : 4 mV, 10 mV et 20 mV. Les trois mesures donnent des valeurs de résistance à tension nulle égales, la mesure avec  $U_G = 4$  mV étant plus bruitée, elle n'a pas été retenue. La courbe présentée au (b) de la figure III.34 page ci-contre montre bien une dépendance de la résistance en température typique du transport

6. Le modèle de Brinkman *et al.* concerne les barrières asymétriques séparant deux métaux. L'utiliser pour une jonction Métal/Isolant/Semi-conducteur peut conduire à des biais, en particulier au niveau des variations en fonctions de la température car le niveau de Fermi d'un semi-conducteur se déplace beaucoup plus que celui d'un métal.

tunnel (voir [Jönsson-Åkerman, 2000]). Le troisième critère de Rowell est donc également vérifié.

Malgré les efforts réalisés pour faire des mesures de transport dans les mêmes conditions que celle utilisées lors des mesures d'électroluminescence, cette étude comporte quelques biais. Les mesures d'électroluminescence sont réalisées en courant pulsé et non lentement variable comme pour les mesures de transport tunnel. Si les densités de courant injectées sont similaires entre les mesures de transport et celles d'électroluminescence – typiquement de l'ordre du milli-Ampère –, le substrat de silicium dopé  $n^+$  est en revanche beaucoup moins résistif et le contact face arrière de meilleure qualité. La barrière est donc plus exposée aux phénomènes de charge qui risquent de l'endommager puisque la chute de tension sur le reste de l'échantillon est moindre.

Pour conclure, les mesures réalisées semblent montrer que le transport depuis des plots de 700  $\mu\text{m}$  de diamètre de la couche métallique vers le substrat de silicium dans les structures  $\text{Si } n^+ / \text{Al}_2\text{O}_3 / \text{Co} / \text{Pt}$  est dominé par le transport tunnel. La meilleure confirmation de cette observation est le résultat obtenu sur l'injection de spins pour ce type de structures (voir la section 3.3 page 155).

**b Résistance d'interface** Même si cela n'entre pas directement dans le cadre de cette étude, il est intéressant de s'intéresser aux propriétés de résistance de la barrière tunnel utilisée afin de déterminer si l'électrode  $\text{Al}_2\text{O}_3 / \text{Co} / \text{Pt}$  peut également, dans ces conditions, servir de détecteur électrique de courant polarisé. Datta et Das ont en effet montré qu'en utilisant une structure de transistor planaire [Datta, 1990], il y avait une différence de résistance de l'ensemble Electrodes-Canal semi-conducteur suivant la configuration magnétique – parallèle ou anti-parallèle – des électrodes. Mais Fert *et al.* ont montré que cette variation n'était sensible que pour une certaine fenêtre de valeurs de la résistance de la barrière tunnel, ou plus précisément pour une certaine fenêtre du rapport  $\frac{r_b}{r^{SC}}$  [Fert, 2001] [Fert, 2007], où  $r_b$  est la résistance de la barrière et  $r^{SC}$  la résistance de spin du canal semi-conducteur.

En utilisant les notations de la section 1.3 page 58 et en notant  $t^{SC}$  la longueur du canal semi-conducteur entre l'injecteur et le détecteur, Fert *et al.* ont montré que la variation de résistance de l'empilement *Electrode ferromagnétique / Barrière tunnel / Canal semi-conducteur / Barrière tunnel / Electrode ferromagnétique* s'écrivait, dans l'approximation  $t^{SC} \ll l_{sf}^{SC}$ , comme :

$$\Delta R = \frac{2(\mathcal{P}r^{FM} + \gamma r_b)^2}{(r^{FM} + r_b) + \frac{r^{SC}}{2} [1 + (\frac{r_b}{r^{SC}})^2] \frac{t^{SC}}{l_{sf}^{SC}}} \quad (\text{III.38})$$



Il est intéressant de comparer cette valeur avec la résistance du même empilement lorsque les aimantations des électrodes sont parallèles. Valet *et al.* ont montré [Valet, 1993] :

$$R_{\text{parallèle}} = 2(1 - \mathcal{P}^2)r^{FM} + r^{SC}\frac{t^{SC}}{l_{sf}^{SC}} + 2(1 - \gamma^2)r_b + 2\frac{(\mathcal{P} - \gamma)^2 r^{SC} r_b + r^{SC}(\mathcal{P}^2 r^{SC} + \gamma^2 r_b) \tanh(\frac{t^{SC}}{2l_{sf}^{SC}})}{(r^{FM} + r_b) + r^{SC} \tanh(\frac{t^{SC}}{2l_{sf}^{SC}})} \quad (\text{III.39})$$

Pour le système étudié CoPt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Si/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/CoPt en prenant les valeurs suivantes :

- Les données pour le CoPt désordonné n'étant pas accessibles dans la littérature, elles sont remplacées par celles du cobalt.  $\mathcal{P} = 0,46$  et  $r^{FM} = 4,5 \cdot 10^{-15} \Omega m^2$ . [Fert, 2001]
- La polarisation d'une barrière d'alumine est typiquement de l'ordre de  $\gamma = 0,5$  [Monsma, 2000]. Les mesures réalisées au paragraphe a page 103 donnent une résistance de  $5 \cdot 10^5 \Omega$  pour des plots de  $3,8 \cdot 10^{-7} m^2$  soit  $r_b = 0,19 \Omega m^2$ .
- Il est difficile d'estimer la longueur de diffusion de spin dans le silicium, mais elle est d'au moins  $350 \mu m$  [Huang, 2007]. La résistivité du silicium dépend du dopage, elle vaut  $\rho_{Si} \approx 10^{-1} \Omega cm$  pour un dopage  $n = 10^{18} cm^{-3}$  [Sze, 1981]. On prendra donc comme valeur  $r^{SC} = 3,5 \cdot 10^{-7} \Omega m^2$ .

Les résultats de la variation de résistance  $\Delta R$  de l'ensemble de la structure suivant les configurations magnétiques des électrodes, ainsi que la variation relative de magnétorésistance  $\frac{\Delta R}{R_{\text{parallèle}}}$  sont présentés dans le tableau III.36. Ces variations sont très faibles.

$t^{SC}$	$\Delta R (\Omega m^2)$	$R_{\text{parallèle}} (\Omega m^2)$	$\frac{\Delta R}{R_{\text{parallèle}}}$
1 nm	$5,4 \cdot 10^{-2}$	$2,9 \cdot 10^{-1}$	18%
10 nm	$1,1 \cdot 10^{-2}$	$2,9 \cdot 10^{-1}$	3,7%
100 nm	$1,2 \cdot 10^{-3}$	$2,9 \cdot 10^{-1}$	0,4 %
1 $\mu m$	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$2,9 \cdot 10^{-1}$	0,04 %
10 $\mu m$	$1,2 \cdot 10^{-5}$	$2,9 \cdot 10^{-1}$	0,004 %
100 $\mu m$	$1,2 \cdot 10^{-6}$	$2,9 \cdot 10^{-1}$	0,0004 %

**FIGURE III.36:** Prédictions théoriques de la variation de la résistance d'une structure Electrode ferromagnétique / Barrière tunnel / Canal semi-conducteur / Barrière tunnel / Electrode ferromagnétique suivant la configuration magnétique des électrodes en fonction de la longueur  $t^{SC}$  du canal semi-conducteur.

On retrouve bien la conclusion de Fert *et al.* à savoir que la résistance d’interface doit être comprise entre  $r^{SC}(\frac{t^{SC}}{t_{sf}^{SC}})$  et  $r^{SC}(\frac{t_{sf}^{SC}}{t^{SC}})$  pour avoir une magnétorésistance significative sur de tels systèmes. Cette condition ne peut être remplie avec des tailles de canal semi-conducteur raisonnables car  $\frac{r_b}{r^{SC}} > 5.10^5$ . Une barrière d’alumine de 3,2 nm d’épaisseur est trop résistive pour permettre la détection électrique de courant polarisé. La dépendance exponentielle de la résistance d’une barrière tunnel avec l’épaisseur autoriserait peut-être l’utilisation de ce matériau pour réaliser le transistor de Datta et Das à condition de savoir fabriquer des couches d’alumine sans fuite beaucoup plus fines.

### 3.2.3 Polarisation de l’empilement

L’injection d’un courant polarisé en spin dans un matériau possédant deux canaux de conceptions *équivalents* depuis une électrode ferromagnétique est intrinsèquement limitée par la polarisation en spin de l’injecteur, c’est à dire par le déséquilibre des deux populations de spin qu’il crée au niveau de Fermi. Il a été montré dans la section 1.2 page 50 que la polarisation en spin d’un empilement isolant-métal ferromagnétique dépendait du métal mais également de son couplage avec la barrière. Pour pouvoir estimer l’efficacité de l’injection de spins dans un matériau, il est nécessaire de pouvoir estimer la polarisation de l’injecteur utilisé.

Il existe plusieurs méthodes expérimentales pour connaître la polarisation d’un injecteur donné<sup>7</sup>. La plus directe est de mesurer la magnétorésistance tunnel entre l’injecteur et une électrode de référence, méthode présentée au paragraphe d page 56.

Lors de l’étude de la magnétorésistance tunnel sur des systèmes cobalt-Isolant-LSMO<sup>8</sup>[Teresa, 1999], le signe de la magnétorésistance est positif – la probabilité de tunneler est plus importante pour les électrons du canal de spin majoritaire – lorsque l’Isolant est de l’alumine. L’étude de De Teresa *et al.* montre que le signe de la polarisation du couple Co-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> est le même que celui de la densité d’états au niveau de Fermi des électrons *s* du cobalt et inverse de celle des électrons de type *d*. La prédominance des électrons de type *s* dans le transport tunnel à travers l’alumine est généralement avancée pour expliquer ce phénomène.

Une revue assez complète du transport tunnel dépendant du spin et en particulier de la liaison cobalt-alumine est donnée par Tsymbal *et al.* [Tsymbal, 2003]. La

7. Dans le cas d’un système entièrement épitaxié, l’ordre chimique parfait des couches créées permet sans doute de calculer théoriquement la polarisation d’un tel empilement. Pour des couches polycrystallines déposées par pulvérisation cathodique et qui forment un alliage après recuit, la méconnaissance de l’arrangement atomique empêche de déterminer cette polarisation par le calcul.

8. Le  $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$  ou LSMO est un semi-métal dont la polarisation positive très forte au niveau de Fermi révélée par des mesures de photo-émission résolue en spin ne permet le transport que par le canal de spin majoritaire [Park, 1998]. Le signe de la magnétorésistance tunnel entre un métal ferromagnétique et une électrode de LSMO dépend donc de la polarisation du métal ferromagnétique.

polarisation de cet empilement est intimement lié aux effets d'interface et aux hybridations des orbitales atomiques des matériaux qui gouvernent les contributions des différentes bandes au transport tunnel. Etant donné l'importance que prend cette liaison dans notre système recuit, il est raisonnable de penser que l'effet principal du filtrage en spin est justement dû à cette interface et plus qu'à la formation d'un alliage cobalt-platine. La polarisation de l'injecteur utilisé est donc vraisemblablement comparable à celle, connue, de l'empilement cobalt-alumine et qui vaut  $\mathcal{P} = 42\%$  [Tsymbal, 2003].

### 3.3 Autres injecteurs testés

#### 3.3.1 Multicouches cobalt platine

Pour obtenir une couche à aimantation perpendiculaire, une solution est de jouer sur l'anisotropie perpendiculaire apportée sur les interfaces dans les multicouches de cobalt-platine (voir 1.1.4 page 47). Le premier injecteur testé a été une structure  $Al_2O_3/Pt(1\text{ nm})/(Co(0,5\text{ nm})/Pt(1,8\text{ nm}))_4$  qui présente une aimantation hors-plan 100% rémanente. Les épaisseurs des différentes couches sont issues des travaux de thèse de S. Landis [Landis, 2001] puis J. Moritz [Moritz, 2003]. Les dépôts d'alumine puis des multicouches de CoPt ont été réalisés dans les mêmes bûts que pour les structures présentées au paragraphe 3.1 page 85.

Ces échantillons n'ont pas donné de résultats pour l'injection de spins, sans doute à cause de la faible épaisseur de cobalt et du buffer de platine. Celui-ci dégrade probablement beaucoup la polarisation en spin du courant lorsqu'il le franchit – le platine est fortement dépolarisant pour les spins en raison d'un fort couplage spin-orbite –, et d'autre part l'absence de contact direct entre la couche magnétique et la barrière limite le filtrage en spin de celle-ci. La présence de ce buffer est néanmoins indispensable pour obtenir une couche à aimantation perpendiculaire<sup>9</sup> car les multicouches de cobalt-platine ne possèdent cette propriété uniquement si elles croissent sur une couche texturée, ce qui n'est pas le cas si la première des multicouches est du cobalt.

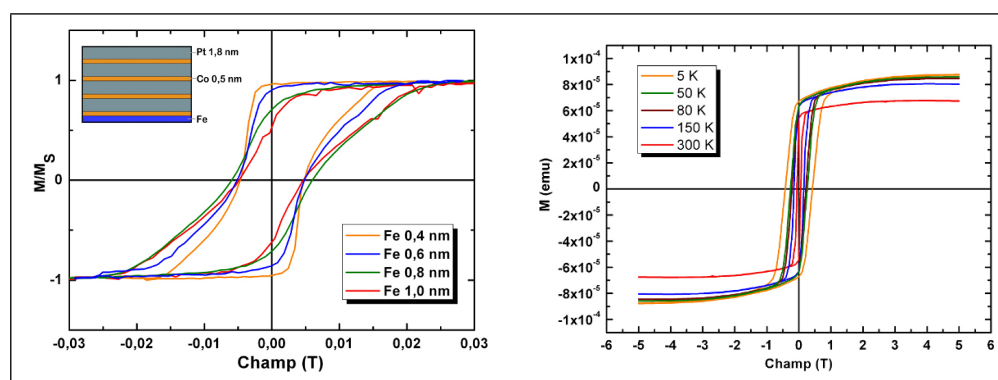
#### 3.3.2 Couches à aimantation planaire redressée

Une autre solution envisagée pour injecter des spins a été de se focaliser sur la notion de filtrage en spin, c'est à dire d'utiliser des couples de matériaux barrière tunnel - métal ferromagnétique connus pour exhiber une forte polarisation ou pour lesquels des résultats d'injection de spins ont déjà été démontrés. Deux couples répondant à ce critère ont été retenus :  $Fe/Al_2O_3$  et  $CoFeB/MgO$ .

9. L'effet de l'épaisseur de la couche tampon de platine est précisément décrit dans le travail de thèse de S. Landis [Landis, 2001]

Chercher à optimiser la propriété de polarisation du couple barrière-électrode se fait au détriment du choix de la direction d'aimantation de celle-ci, qui est dans le plan de la couche pour les deux couples choisis. Il est donc nécessaire de trouver un moyen pour redresser cette aimantation. Puisque Fe et CoFeB croissent de manière texturée (111), la reprise de multicouches  $(CoPt)_4$  à aimantation perpendiculaire est possible sur ces électrodes, en espérant que le couplage d'échange entre électrode à aimantation planaire et multicouches à aimantation perpendiculaire suffise pour redresser l'aimantation de l'ensemble.

**a Fer-alumine** La première idée a été d'utiliser le couple fer-alumine dont les propriétés de polarisation ont déjà été utilisées pour l'injection de spins dans le silicium par Jonker *et al.* [Jonker, 2007]. La structure complète de cet injecteur est présentée au (a) de la figure III.37. Les propriétés magnétiques semblent permettre l'injection de spins comme le montrent les graphes de la figure III.37 mais aucun résultat n'a pu être obtenu grâce à ces structures.



**FIGURE III.37:** Courbes d'aimantation des structures Fe-(CoPt)<sub>4</sub>

(a) Mesures par effet Kerr des cycles d'hystérésis des couches Fe-(CoPt)<sub>4</sub> suivant l'épaisseur de fer déposée. En inset un schéma de la structure. (b) Mesures par SQUID des cycles d'hystérésis d'une couche Fe 0,5 nm/(CoPt)<sub>4</sub> suivant la température.

**b Barrière d'oxyde de magnésium** L'idée d'utiliser la même méthode pour redresser l'aimantation de structures  $MgO/CoFeB$  a été envisagée. Céline Portemont de la start-up Crocus a réalisé des croissances suivantes : 1,1 nm de Mg suivi d'une oxydation plasma puis une couche de CoFeB de quelques nanomètres d'épaisseur, puis recuit pour assurer une recristallisation du MgO. Après ces étapes, les échantillons sont transférés dans le bati de pulvérisation cathodique de Stéphane Auffret

du laboratoire SPINTEC qui dispose d'un graveur ionique pour permettre une légère gravure de la surface du CoFeB avant dépôt de la multicouche de  $(CoPt)_4$ . Cette gravure ayant pour but d'enlever la couche d'oxyde en surface puis d'amincir la couche magnétique pour que l'effet de la multicouche  $(CoPt)_4$  soit suffisant pour redresser l'aimantation totale. Différents temps de gravure ont été testés jusqu'à obtenir une aimantation perpendiculaire.

Les tests d'injection de spin avec ces structures n'ont pas donné de résultats. Une mesure au SQUID de l'aimantation de la couche après gravure du CoFeB et dépôt du  $(CoPt)_4$  a donné un résultat sensiblement équivalent à celui d'une multicouche  $Pt/(CoPt)_4$ . Il est donc probable que l'aimantation de cette couche ne devienne perpendiculaire que lorsque la couche de CoFeB a été entièrement gravée, ce qui expliquerait l'absence de résultats d'injection de courant polarisé.

## 4 Conclusion

Ce chapitre a permis de montrer la possibilité de réaliser des structures barrière tunnel - métal ferromagnétique permettant l'injection de courant polarisé en spin dans différents matériaux semi-conducteurs sans avoir à appliquer de champ magnétique.

Le première réussite de ce travail est la croissance entièrement épitaxiée d'une électrode  $MgO/FePt$  dans la structure  $L1_0$  avec un très bon ordre chimique et donc une forte anisotropie perpendiculaire sur GaAs. La croissance d'une telle électrode est prometteuse pour l'étude de l'injection de spins grâce au filtrage en spin d'une barrière de MgO épitaxiée mais l'injection n'a pas pu être validée. Un article est en cours de rédaction sur cette croissance.

La croissance par pulvérisation cathodique de l'électrode  $Al_2O_3/Co/Pt$  qui possède une aimantation perpendiculaire après recuit a été le deuxième résultat probant de ce chapitre. Cette structure, dont l'idée a été proposée par Bernard Rodmacq, nous a permis de valider l'injection de courant polarisé en spin dans le silicium. Une étude plus approfondie de cette électrode nous a permis de montrer l'amplitude de la variation des propriétés magnétiques et structurale d'une telle couche en fonction du recuit. Un papier est également en préparation sur ce phénomène.



## Chapitre IV

# Le détecteur

### Sommaire

---

<b>1 Transport polarisé en spin dans les semi-conducteurs . . . . .</b>	<b>114</b>
1.1 Le couplage spin-orbite . . . . .	114
1.2 Mécanismes de dépolarisation du courant . . . . .	116
1.3 Détection optique du courant polarisé . . . . .	124
1.4 Manipulation d'un courant polarisé. . . . .	130
<b>2 Injection de spins dans le GaAs . . . . .</b>	<b>133</b>
2.1 Le GaAs . . . . .	134
2.2 Etude pour l'injection de spin. . . . .	140
2.3 Conclusion sur l'injection dans le GaAs . . . . .	142
<b>3 Injection et détection optique de spins dans le silicium. . . . .</b>	<b>142</b>
3.1 Généralités sur les alliages Si/SiGe . . . . .	142
3.2 Structures à base de silicium . . . . .	146
3.3 Détection et polarisation du courant injecté. . . . .	155
<b>4 Conclusion . . . . .</b>	<b>163</b>

---

Si le chapitre précédent traitait de la création d'un courant électrique polarisé en spin, celui-ci se consacre à son transport dans différents matériaux semi-conducteurs. Une première partie du chapitre apporte quelques éclaircissements théoriques sur différents points évoqués dans la littérature, puis les travaux réalisés avec l'arséniure de gallium et le silicium sont présentés. Les résultats concernent principalement les travaux sur le silicium puisque si la fabrication des échantillons pour étudier le transport polarisé dans l'arséniure de gallium a été menée jusqu'au bout, la partie détection n'est pas terminée.

# 1 Transport polarisé en spin dans les semi-conducteurs

## 1.1 Le couplage spin-orbite

Le phénomène physique à la base de l'étude du transport polarisé dans les semi-conducteurs est le *couplage spin-orbite*. Cette interaction entre le moment de spin de l'électron et son orbite permet aussi bien la manipulation des spins que leur détection. Elle est cependant aussi responsable de la plupart des phénomènes de dépolarisation du courant. Nous ferons ici un bref rappel sur ce couplage.

Le cas le plus simple pour comprendre et modéliser ce couplage est celui de l'atome d'hydrogène, que nous allons partiellement traiter avant de généraliser aux édifices polyatomiques puis aux cristaux.

Un électron de spin  $\vec{S}$  possède un moment magnétique de spin  $\vec{\mu} = -\frac{g\mu_B}{\hbar}\vec{S}$  ou  $g \approx 2$  est le facteur de Landé et  $\mu_B = \frac{\hbar e}{2m_e}$  le magnéton de Bohr. L'énergie d'un moment magnétique dans un champ magnétique  $\vec{B}$ , appelée *énergie Zeeman* est donnée par  $H_z = -\vec{\mu} \cdot \vec{B}$ . En se déplacement au voisinage d'un atome, l'électron n'est pas soumis directement à un champ magnétique mais au champ électrique dû au noyau. Dans le référentiel de l'électron, ce champ électrique est vu comme un champ magnétique effectif donné par :

$$\vec{B}_{eff} = -\frac{\vec{v} \wedge \vec{E}}{c^2} \quad (IV.1)$$

Le couplage spin-orbite est donc un phénomène purement relativiste.

En écrivant que le champ  $\vec{E}$  est radial et en utilisant l'approximation de champ central, on peut écrire  $\vec{E} = \frac{1}{e} \frac{\partial U(r)}{\partial r} \vec{u}_r$  où  $U(r)$  est l'énergie potentielle de l'électron dans le champ central. Puisque le moment angulaire  $\vec{L} = \vec{u}_r \wedge m\vec{v}$ , le champ magnétique effectif peut s'écrire :

$$\vec{B}_{eff} = \frac{1}{m_e e c^2} \frac{1}{r} \frac{\partial U(r)}{\partial r} \vec{L} \quad (IV.2)$$

et l'énergie associée au déplacement du spin dans ce référentiel non-galiléen est donnée par :

$$\Delta H = \frac{\mu_B}{\hbar m_e c^2} \frac{1}{r} \frac{\partial U(r)}{\partial r} \vec{L} \cdot \vec{S} \quad (IV.3)$$



Pour trouver les décalages en énergie liés à ce couplage, il faut trouver une base qui diagonalise l'hamiltonien non perturbé  $\mathbf{H}_0$  et  $\Delta\mathbf{H}$ . En prenant le produit scalaire de l'opérateur de moment angulaire total  $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$  par lui-même et en notant que  $\mathbf{L}$  et  $\mathbf{S}$  commutent, on obtient  $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S} = \frac{1}{2}(\mathbf{J}^2 - \mathbf{L}^2 - \mathbf{S}^2)$ . La base pour diagonaliser les cinq opérateurs  $\mathbf{H}_0$ ,  $\mathbf{J}^2$ ,  $\mathbf{L}^2$ ,  $\mathbf{S}^2$ ,  $\mathbf{J}_z$  et  $\Delta\mathbf{H}$  – il est possible de montrer qu'ils commutent tous entre eux – sont donc les fonctions d'ondes solutions de l'hamiltonien non perturbé quantifiées par les nombres quantiques principal  $n$ , du moment angulaire total  $j$ , du moment angulaire orbital  $l$ , de spin  $s$  et  $j_z$  la composante suivant  $z$  du moment angulaire total.

Il est possible de montrer que le décalage en énergie s'écrit

$$\Delta E = \frac{\beta}{2}(j(j+1) - l(l+1) - s(s+1)) \quad (\text{IV.4})$$

où, pour l'atome d'hydrogène,  $\beta$  est donné par :

$$\beta = \frac{\mu_0}{4\pi} g \mu_B^2 \frac{1}{n^3 a_0^3 l(l+1/2)(l+1)} \quad (\text{IV.5})$$

Dans le cas d'un atome mono-ionisé à  $Z$  protons,  $\beta$  s'écrit :

$$\beta = Z^4 \frac{\mu_0}{4\pi} g \mu_B^2 \frac{1}{n^3 a_0^3 l(l+1/2)(l+1)} \quad (\text{IV.6})$$

Cette dernière formule ne s'applique que dans un cadre très restreint mais elle montre que le décalage en énergie liée au couplage spin-orbite augmente rapidement avec le numéro atomique du noyau. Ce résultat est une tendance générale qui se retrouve aussi bien pour les atomes pris isolément que dans les solides. Les décalages en énergie dus à l'interaction spin-orbite sont responsables de la structure fine des atomes, observable via la séparation des raies spectrales, comme par exemple le doublet du Sodium.

Le calcul du couplage spin-orbite dans les matériaux massifs se fait en remplaçant le potentiel sphérique de l'atome d'hydrogène par le potentiel périodique lié au cristal. Ce calcul très complexe est généralement traité comme perturbation du calcul de bandes qui fait soit appel à des calculs *ab-initio*, soit à des approximations de type *ondes planes orthogonales*, *pseudo-potentiels*, *approximation*  $\vec{k} \cdot \vec{p}$ , ...

De même que dans le cas des atomes isolés, l'intensité du couplage spin-orbite dans les cristaux augmente avec le numéro atomique des atomes le constituant. Une conséquence visible du couplage spin-orbite est le décalage en énergie d'une des branches de la bande de valence des semi-conducteurs en  $\vec{k} = \vec{0}$ . Le décalage de la bande *split-off* de quelques semi-conducteurs est résumé dans le tableau IV.1 page suivante, les valeurs proviennent de [Smith, 1978].

Matériau	$E_{split\ off}$
GaAs	0,34 eV
Ge	0,29 eV
Si	0,05 eV

**FIGURE IV.1:** Décalage *split-off* de la bande de valence de quelques matériaux

## 1.2 Mécanismes de dépolarisation du courant

### 1.2.1 Les différents mécanismes

Lorsqu'une population de porteurs polarisés en spin est injectée dans un semi-conducteur, elle se trouve dans un état hors d'équilibre. Le retour à l'équilibre via la relaxation de spin est un phénomène primordial à comprendre et à évaluer pour la spintronique, celle-ci n'étant viable que si les temps caractéristiques de relaxation de spins sont grands devant les temps nécessaires pour les manipuler et les détecter.

Il existe plusieurs phénomènes conduisant à une dépolarisation d'une population de spins. Ces phénomènes dépendent aussi bien du semi-conducteur – nature cristallographique, dopage, impuretés, ... – que de la nature des porteurs polarisés en spin – électrons ou trous – mais ils mettent tous en jeu le couplage spin-orbite.

**a Mécanisme Elliott-Yafet** En 1953, plusieurs publications [Portis, 1953] [Willenbrock, 1953] mentionnent des variations de largeurs de raie de résonance magnétique et de facteur de Landé dans les semi-conducteurs en fonction de la concentration d'impuretés. Elliott suppose que ces effets sont liés au couplage spin-orbite et en 1954 [Elliott, 1954] il propose une théorie du transport dans les semi-conducteurs prenant en compte ces effets de couplage dans la diffusion des électrons sur les impuretés ou les phonons du réseau. Des calculs prenant en compte les effets de spin-orbite dans les métaux ont été établis par Yafet [Yafet, 1952] dès 1952.

Elliott émet l'hypothèse que dans un semi-conducteur réel les porteurs de charge ne se déplacent pas simplement dans une structure rigide parfaite imposant un potentiel périodique, mais que la présence de phonons et d'impuretés rajoute à l'équation de Schrödinger un terme de couplage spin-orbite qui devient :

$$\left( \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V + \frac{\hbar}{4m^2c^2} (\nabla V \wedge \mathbf{p}) \cdot \boldsymbol{\sigma} \right) \Psi = E\Psi \quad (\text{IV.7})$$

où  $\mathbf{p}$  est l'opérateur de moment et  $\boldsymbol{\sigma}$  les matrices de Pauli. La masse  $m$  est celle de l'électron libre et le potentiel  $V$  celui, indépendant du spin, imposé par la structure périodique du réseau. Cette équation est obtenue à partir de l'équation de Dirac qui

prend en compte le spin de l'électron et en négligeant les termes relativistes d'ordre supérieur à deux. Les fonctions de Bloch, solutions usuelles de ce problème ne sont plus fonctions propres de l'équation IV.7 page ci-contre à cause du terme de spin dans l'Hamiltonien, mais il faut maintenant considérer des fonctions du type :

$$\Psi_{|+\rangle} = \left( a_k(\vec{r})|+\rangle + b_k(\vec{r})|-\rangle \right) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{IV.8})$$

$$\Psi_{|-\rangle} = \left( a_{-k}^*(\vec{r})|+\rangle - b_{-k}^*(\vec{r})|-\rangle \right) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{IV.9})$$

$$(\text{IV.10})$$

où  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$  sont les états de spin  $\pm \frac{1}{2}$  le long de la direction de quantification. Les fonctions  $a_k$  et  $b_k$  possèdent évidemment la périodicité du réseau comme les fonctions de Bloch mais sont nécessaires pour exprimer les états du système puisque l'Hamiltonien mélange les états  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$ . Généralement,  $|a| \gg |b|$ .

Le couplage spin-orbite seul ne conduit pas à la dépolarisation du courant. Mais lors d'un phénomène de diffusion, sur une impureté ou sur un phonon, il couple les états de spin opposés de même vecteur d'onde sur des bandes différentes. En traitant ce couplage comme perturbation – son intensité est faible devant les distances interbandes – Elliott a évalué  $|b| \approx \lambda_{SO}/\Delta E$  où  $\Delta E$  est la différence d'énergie entre deux états de même  $\vec{k}$  sur deux bandes distinctes et  $\lambda_{SO}$  l'amplitude de l'élément de matrice qui couple ces deux états.

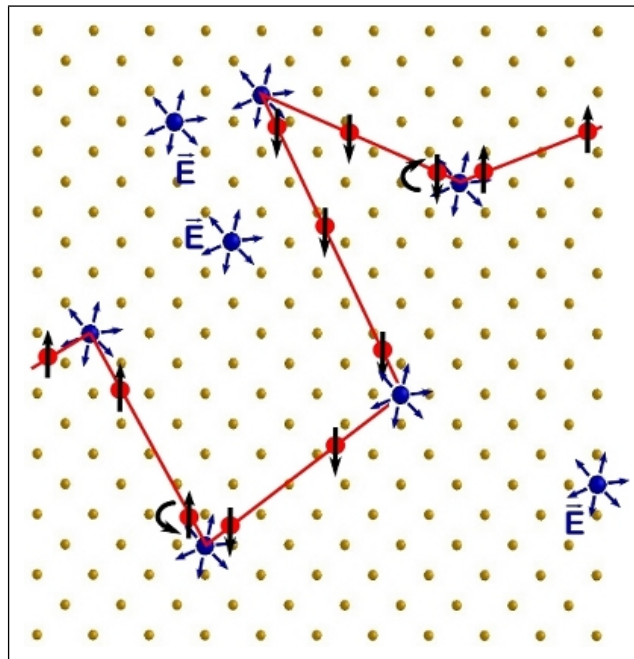
**b Mécanisme Dyakonov-Perel** En 1955, Dresselhauss [Dresselhaus, 1955] démontre par des considérations de symétrie et en utilisant la théorie des groupes que pour les semi-conducteurs cristallisés dans la structure Zinc-Blende <sup>1</sup> il y a un décalage énergétique entre les bandes de spin up et down dû à l'absence de symétrie d'inversion du cristal. Pour  $\vec{k} \neq \vec{0}$ ,  $E_{(\vec{k},|+\rangle)} \neq E_{(\vec{k},|-\rangle)}$ . Ce décalage est proportionnel à  $k^3$ .

La bande de conduction dans les cristaux de type Zinc-Blende n'est plus une simple parabole mais l'énergie a pour forme :

$$E(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \hbar \vec{\Omega}(\vec{k}) \cdot \vec{S} \quad (\text{IV.11})$$

Le terme additionnel, traduisant le décalage énergétique entre les bandes de spin up et down, peut être vu comme l'énergie d'un spin dans un champ magnétique effectif – à ceci près que ce champ dépend de  $\vec{k}$ . Son effet va donc être analogue

1. Le GaAs, par exemple, possède cette structure. Un schéma de la maille de GaAs est présenté figure IV.12 page 135.

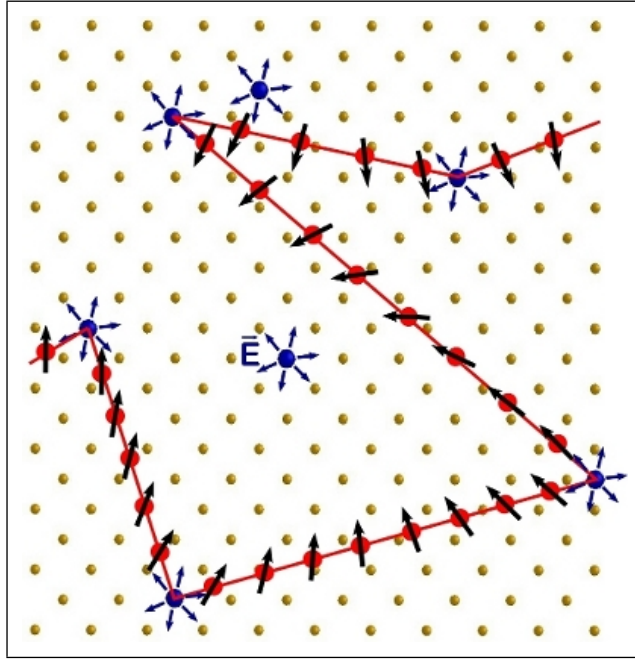


**FIGURE IV.2:** Schéma représentant le mécanisme Elliott-Yafet de dépolarisation des spins. Cette dépolarisation est due à la diffusion des porteurs sur les impuretés ou phonons du réseau et au couplage spin-orbite.

à l'effet Zeeman, les spins vont précesser autour de leur champ local intrinsèque  $\vec{B}_{intr.}(\vec{k})$  à la fréquence de Larmor donnée par :

$$\vec{\Omega}(\vec{k}) = \frac{e\hbar}{m} \vec{B}_{intr.}(\vec{k}) \quad (\text{IV.12})$$

Entre deux collisions sur des impuretés ou des phonons, il va donc y avoir déphasage progressif des spins par précession autour de ce champ effectif conduisant à une relaxation, cet effet augmentant avec l'énergie des électrons puisque le décalage des bandes augmente avec  $\vec{k}$ . A chaque diffusion,  $\vec{k}$  change de direction de manière aléatoire, la direction du champ magnétique interne qui lui est associé également et la précession se fait autour d'un autre axe. A l'inverse du mécanisme d'Elliott-Yaffet, les diffusions sont ici bénéfiques puisqu'elles *réinitialisent* la précession.



**FIGURE IV.3:** Schéma représentant le mécanisme Dyakonov-Perel de dépolarisation des spins. Cette dépolarisation est due à l'absence de symétrie d'inversion des cristaux dans la structure Zinc-Blende. Les diffusions sur impuretés ont ici tendance à ralentir les phénomènes de dépolarisation du courant.

**c Mécanisme Bir-Aronov-Pikus** Bir *et al.* [Bir, 1975] ont montré en 1975 un nouveau mécanisme de dépolarisation des spins portés par les électrons dû à leur

interaction d'échange avec les trous de la bande de valence. Bir *et al.* puis Žutić *et al.* [Žutić, 2004] ont montré que cette interaction était régie par l'hamiltonien suivant :

$$H = AS\mathbf{J}\delta(\vec{r}) \quad (\text{IV.13})$$

ou  $A$  est proportionnelle à l'intégrale d'échange entre les états de conduction et de valence<sup>2</sup>,  $S$  l'opérateur de moment de spin des électrons,  $\mathbf{J}$  l'opérateur de moment angulaire des trous et  $\vec{r}$  la position relative des électrons et des trous. Le symbole de Kronecker  $\delta$  traduit le fait que cette interaction est à courte portée, elle dure donc tant que la distance entre électrons et trous est inférieure à la longueur d'onde des électrons. Il est donc nécessaire que la densité de trous soit élevée pour que ce mécanisme soit important, il est donc prépondérant dans les matériaux fortement dopés  $p$ .

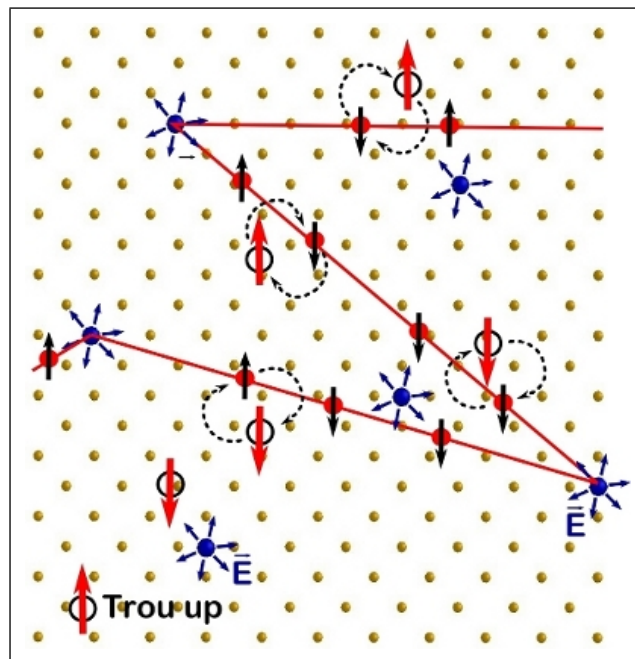
Ce mécanisme va dépendre de la nature des trous qui interagissent et selon s'ils sont libres ou liés à une impureté. En revanche, en raison de l'importance du couplage spin-orbite dans la bande de valence, chaque diffusion d'un trou entraîne une perte de spin. Il est donc pratiquement impossible de maintenir une population de spins hors d'équilibre portée par des trous, ce qui explique l'importance de ce mécanisme lorsque la densité de trous est grande.

**d Relaxation par interaction hyperfine avec les spins nucléaires** Certains noyaux sont porteurs d'un spin nucléaire –  $I = \frac{3}{2}$  pour le gallium et l'arsenic par exemple, mais pas l'isotope majoritaire du silicium. Le spin porté par chacun des noyaux possède une orientation aléatoire qui crée un champ magnétique effectif susceptible de dépolariser les électrons. Ce mécanisme est généralement très faible et peut être négligé sauf éventuellement pour les électrons localisés lorsque les autres sources de dépolarisation n'existent pas, ce qui est le cas pour les boîtes quantiques par exemple [Khaetskii, 2000].

### 1.2.2 Effets de ces mécanismes

**a Dépolarisation d'une population de spin : temps de cohérence** Les phénomènes induisant la relaxation en spin d'une population de porteurs peuvent être vus comme l'action de champs magnétiques autour desquels précèdent les spins. Ces champs magnétiques ne sont pas réels mais sont vus par les électrons en mouvement comme des champs magnétiques *effectifs*, ils proviennent soit du couplage spin-orbite soit d'interactions d'échange. Un électron voit donc une succession de champs magnétiques fluctuants. Les paramètres importants liés à chaque champ

2. Le lecteur souhaitant approfondir ce point pourra se référer à [Bir, 1975].



**FIGURE IV.4:** Schéma représentant le mécanisme Bir-Aronov-Pikus de dépolarisation des spins. Dans les semi-conducteurs dopés p, les spins se dépolarisent par interaction d'échange avec les trous non polarisés présents.

est son amplitude – qui va jouer sur la pulsation  $\omega$  de précession des spins comme  $\omega = \frac{e\hbar}{m}|B_{intr.}|$  – et son temps de corrélation  $\tau_c$ , le temps pendant lequel il va pouvoir être considéré comme constant. L'image de la dépolarisation peut être représentée comme des spins précessant autour de directions aléatoires à la pulsation  $\omega$  pendant un temps  $\tau_c$ , temps après lequel ils oscillent autour d'une nouvelle direction.

Le paramètre important pour étudier la dépolarisation du courant est la grandeur sans dimension  $\omega\tau_c$  qui est typiquement l'angle de précession du spin durant le temps de corrélation. Deux cas limites vont se présenter :

- $\omega\tau_c \ll 1$ . Dans la plupart des cas, l'angle de précession est faible et pendant un temps  $t$ , le spin *subit* un nombre  $n = \frac{t}{\tau_c}$  de directions de précession. Les différentes directions de précession n'étant pas corrélées, le carré de l'angle de précession après un temps  $t$  est donné par  $\frac{t}{\tau_c}(\omega\tau_c)^2$ . Le temps de relaxation de spin  $\tau_s$  peut alors être défini comme le temps au bout duquel cette grandeur devient de l'ordre de 1, soit  $\tau_s \approx \frac{1}{\omega^2\tau_c}$ .
- $\omega\tau_c \gg 1$ . Le spin a le temps de précesser plusieurs tours autour de la direction du champ magnétique effectif pendant le temps de corrélation. La projection du spin sur la direction transverse au champ magnétique est totalement perdue pendant le temps de corrélation et la direction du champ magnétique changeant aléatoirement au bout de  $\tau_c$ , la polarisation en spin est complètement perdue. Dans ce cas,  $\tau_s \approx \tau_c$ .

Pour étudier l'influence des différents mécanismes de relaxation, il faut savoir pour chacun évaluer l'ordre de grandeur des paramètres  $\omega$  et  $\tau_c$  qui leur sont associés.

**b Prépondérance des différents mécanismes** Les longueurs de diffusion de spin rapportées dans la littérature sont bien plus importantes pour le silicium – plus de 350  $\mu\text{m}$  à 150 K [Huang, 2007] – que dans l'arséniure de gallium – *seulement* 50  $\mu\text{m}$  à 4 K [Crooker, 2005]. Le couplage spin-orbite étant à l'origine de la plupart des mécanismes de dépolarisation, son importance dans les différents matériaux va être responsable des temps de vie de spin. Le silicium de masse faible présente ainsi un couplage beaucoup plus faible que l'arséniure de gallium plus massif : le décalage de la bande de valence split-off vaut en effet  $E_{split-off} = 0,05 \text{ eV}$  pour le Si contre  $E_{split-off} = 0,34 \text{ eV}$  pour le GaAs.

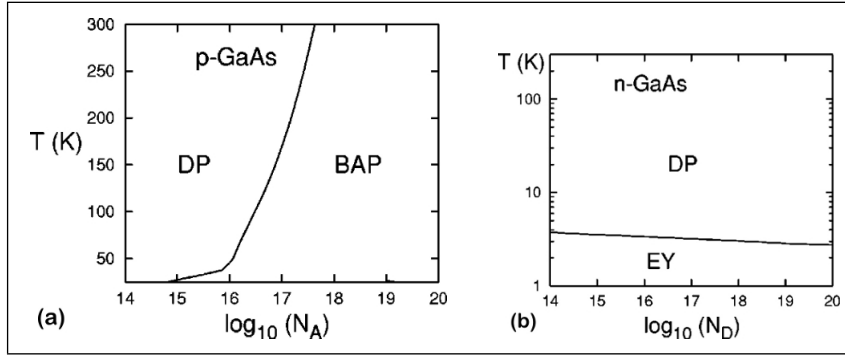
Les temps de vie de spin rapportés dans les matériaux massifs sont donc bien plus importants pour le silicium, 10 ns à 300 K [Fabian, 2007], que pour l'arséniure de gallium, 0,15 ns à 300 K [Kikkawa, 1998].

**Dans l'arséniure de gallium** L'arséniure de gallium est un semi-conducteur avec un couplage spin-orbite relativement important et ne présentant pas de centre de symétrie d'inversion. En fonction du dopage et de la température, tous les mécanismes de dépolarisation présentés au paragraphe 1.2.1 page 116 sont susceptibles



d'exister. Song *et al.* [Song, 2002] ont étudié théoriquement l'importance relative de ces différents mécanismes pour les semi-conducteurs III-V couramment employés en fonction de la température et du dopage.

Leur étude a montré que pour du GaAs dopé *p*, les mécanismes principaux étaient Dyakonov-Perel et Bir-Aronov-Pikus avec une transition en température entre les deux phénomènes dépendant de la concentration  $N_a$  des impuretés dopantes. La figure IV.5 montre que pour un matériau fortement dopé, seul le mécanisme Bir-Aronov-Pikus existe. Pour le GaAs dopé *n*, il n'y a évidemment plus de mécanisme Bir-Aronov-Pikus. En revanche les mécanismes Elliot-Yafet et Dyakonov-Perel coexistent, le premier étant prépondérant à basse température et le second au dessus de 5 K.



**FIGURE IV.5:** D'après [Song, 2002]. Prépondérance des différents mécanismes de dépolarisation des spins dans (a) le GaAs dopé *p* et (b) le GaAs dopé *n* en fonction de la température et de la concentration en dopants accepteurs ou donneurs. Pour le GaAs dopé *p* la dépolarisation du courant provient des mécanismes Bir-Aronov-Pikus – BAP – ou Dyakonov-Perel – DP –. Ce dernier mécanisme est également présent à basse température dans le GaAs dopé *n*, le mécanisme Elliot-Yafet – EY – dominant à basse température.

Dzhioev *et al.* [Dzhioev, 2002] ont étudié le temps de relaxation du spin  $\tau_{sf}$  vers 4 K en fonction du dopage *n* du semi-conducteur. Ainsi, pour  $N_d > 2.10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , c'est à dire au delà de la transition isolant-métal, les auteurs constatent une forte diminution de  $\tau_{sf}$  avec  $N_d$ , diminution qu'ils attribuent au mécanisme de relaxation Dyakonov-Perel. Ainsi, pour  $N_d = 2.10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ,  $\tau_{sf} = 50\text{ns}$ , mais pour  $N_d = 2.10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ,  $\tau_{sf}$  n'est plus que de l'ordre de la nanoseconde.

**Dans le silicium** Aucun mécanisme de dépolarisation de spins présenté dans la partie 1.2.1 page 116 ne semble très important dans le silicium puisqu'il est

centro-symétrique, avec un faible couplage spin-orbite et ne présente pas de spin nucléaire pour l'isotope majoritaire<sup>3</sup>. Il ne peut donc pas y avoir de dépolarisation par effet Dyakonov-Perel dans le silicium massif. Ce n'est pas forcément le cas dans les couches ultra-minces puisque la symétrie d'inversion est brisée. Jang *et al.* [Jang, 2009] ont montré que ce mécanisme supplémentaire lié à des considérations géométriques pouvait induire des temps de vie de spin divisés par deux.

La première étude détaillée de la dépolarisation de spins dans le silicium est l'œuvre de Lépine en 1970 [Lépine, 1970] en utilisant des mesures de résonance de spin électronique. Cette technique n'a permis d'étudier ces phénomènes uniquement pour des températures inférieures à 150 K, le phénomène prépondérant étant dû au faible couplage spin-orbite. Cette étude a montré une décroissance de la polarisation en fonction de la température comme  $T^{-5/2}$ , décroissance caractéristique des diffusions intra-vallées des électrons avec les phonons acoustiques et prédite par Yafet.

L'étude de la dépolarisation des spins a été traitée théoriquement en 2009 par Cheng *et al.* [Cheng, 2010]. Leurs résultats confirment que le mécanisme prépondérant est lié au couplage spin-orbite tel que prédit par Elliott et Yafet. Ils analysent en outre les différents mécanismes de diffusion intra- et inter-vallées liés aux différents types de phonons et montrent que ces deux mécanismes interfèrent de manière destructive à faible densité de phonon, donc à basse température. Les deux mécanismes de relaxation intra- et inter-vallée doivent être pris en compte contrairement aux prédictions de Yafet et la dépendance en température varie comme  $T^{-3}$ .

Huang *et al.* [Huang, 2007] ont observé dans du silicium des temps de cohérence de spin longitudinaux<sup>4</sup> décroissant avec la température comme  $T^{-5/2}$ , cette loi de puissance étant comparable à celle du mécanisme Elliott-Yafet montrée par Yafet pour les semi-conducteurs à gap indirect [Yafet, 1963]. Mais il est difficile de conclure sur le mécanisme prépondérant dans notre cas puisque l'étude de Huang *et al.* concerne des électrons chauds dans le silicium et que les mesures que nous réalisons permettent d'accéder au temps de vie de spin et non aux temps de cohérence longitudinaux.

### 1.3 Détection optique du courant polarisé

#### 1.3.1 Les spin-LEDs

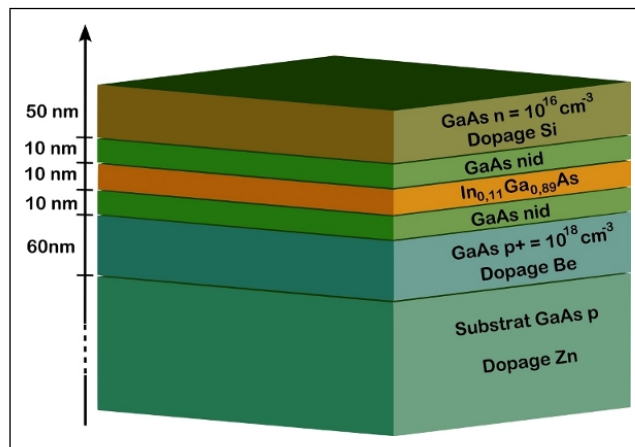
L'étude de l'injection de spins dans les semi-conducteurs nécessite de savoir les détecter par un moyen simple et indépendant des difficultés liées à l'injection,

3. Des isotopes existant du silicium, seul le  $^{29}\text{Si}$  possède un spin nucléaire non-nul  $I = 1/2$  et son abondance relative est de 4,7 %

4. Le temps de cohérence de spin longitudinal est le temps que met une population de spins parallèles précessant en phase à perdre cette cohérence. Il est donc différent du temps de vie de spin, la projection de deux spins sur un axe de quantification étant la même qu'ils soient en phase ou non.

ce que ne permet pas par exemple la détection électrique d'un courant polarisé. En 1999, Jonker a déposé un brevet [Jonker, 1999] proposant d'utiliser une spin-LED – Light Emitting Diode – pour analyser la polarisation d'un courant injecté.

**a Principe d'une spin-LED** La structure d'une spin-LED est schématisée figure IV.6. Une spin-LED est une hétérostructure semi-conductrice constituée d'un puits quantique inséré dans une diode  $p-i-n$ . Un puits quantique est une zone de l'espace présentant un minimum d'énergie pour les particules considérées – ici électrons et trous – et dont une dimension est typiquement de l'ordre de la longueur d'onde de de Broglie de ces particules. Sa réalisation pratique se fait en insérant une faible épaisseur – typiquement la dizaine de nanomètres – d'un matériau à faible gap dans un matériau à plus grand gap. Les électrons et les trous sont alors confinés dans cette zone d'espace.



**FIGURE IV.6:** Représentation d'une spin-LED utilisée pour la détection de spins dans le GaAs. Le puits quantique est réalisé avec une couche de 10 nm d' $\text{In}_{0.11}\text{Ga}_{0.89}\text{As}$  dont le gap vaut  $E_{\text{InGaAs}}^{\text{Gap}} = 1,33 \text{ eV}$  contre  $E_{\text{GaAs}}^{\text{Gap}} = 1,43 \text{ eV}$  pour le GaAs à température ambiante.

La détection de spins grâce à cette structure se fait par électroluminescence. En appliquant une tension sur la spin-LED, les électrons de la zone dopée  $n$  et les trous de la zone dopée  $p$  vont converger vers le puits quantique et, en raison du puits de potentiel qu'il représente, y être confinés. En se recombinant dans cette zone, électrons et trous émettent de la lumière. Si le courant d'électrons injectés depuis la zone dopée  $n$  est polarisée – en traversant une électrode ferromagnétique dans notre cas –, les moments de spin portés par les électrons sont transférés aux photons lors de la recombinaison. La lumière émise est donc polarisée.

**b Analyse en polarisation** Dans le paragraphe qui suit sera exposée la relation quantitative entre la polarisation de la lumière émise par une spin-LED et celle du courant qui la traverse. Cette approche est valable pour les semi-conducteurs à gap direct pour lesquels sont bien connues les règles de sélection optique. Dans le cadre de ce manuscrit il s'agit donc de l'étude dans le GaAs. Une approche qualitative de ce problème sera ensuite exposée pour les semi-conducteurs à gap indirect, comme le silicium.

Dans la partie qui suit, les polarisations en spin du courant  $\mathcal{P}_{spin}$  et de la lumière émise par la spin-LED  $\mathcal{P}_{opt.}$  sont définies respectivement par :

$$\mathcal{P}_{spin} = \frac{j_+ - j_-}{j_+ + j_-} \quad (IV.14)$$

$$\mathcal{P}_{opt.} = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}} \quad (IV.15)$$

où  $j_+$  et  $j_-$  sont les densités de courant portées par les canaux de spins  $\uparrow$  et  $\downarrow$ ,  $I_{\sigma^+}$  et  $I_{\sigma^-}$  les intensités lumineuses polarisées circulairement droite et gauche.

**Structure de bandes des semi-conducteurs** Dans un cristal, quel qu'il soit, le potentiel créé par les atomes du réseau implique que la relation entre l'énergie des électrons et leurs vecteurs d'onde n'est pas la simple parabole des électrons libres mais que ceux-ci sont localisés dans des *bandes d'énergie* séparées par des domaines dans lesquels aucune orbitale ondulatoire d'électron n'est permise : les *bandes interdites*. La façon dont sont remplies les bandes d'énergie va induire la nature du matériau considéré : isolant, conducteur ou semi-conducteur. Si le nombre d'électrons fait que toutes les bandes d'énergie sont soit entièrement remplies, soit complètement vides *et* que la bande interdite entre la plus haute bande remplie et la plus basse bande vide est peu large – suffisamment pour que les électrons excités par agitation thermique puissent occuper la bande de conduction par exemple –, alors le matériaux est un semi-conducteur.

Dans la suite nous nous concentrerons sur la bande pleine de plus haute énergie, la *bande de valence* et sur la bande vide de plus basse énergie, la *bande de conduction* des semi-conducteurs considérés. Pour les semi-conducteurs à gap direct, le minimum de la bande de conduction et le maximum de la bande de valence se situent en  $\vec{k} = \vec{0}$ . La figure IV.8 page 128 présente schématiquement les extrema des bandes de conduction et de valence pour le GaAs, zone des bandes dans laquelle vont se jouer les phénomènes qui nous intéressent. Dans un état excité, certains électrons de la bande de valence peuvent passer dans la bande de conduction, laissant un *trou* dans celle-ci. Le transport électrique est assuré aussi bien par les électrons de la bande de conduction – dans les semi-conducteurs dopé *n* – que par les trous de la bande de valence – dans les semi-conducteurs dopé *p*. Ceux-ci

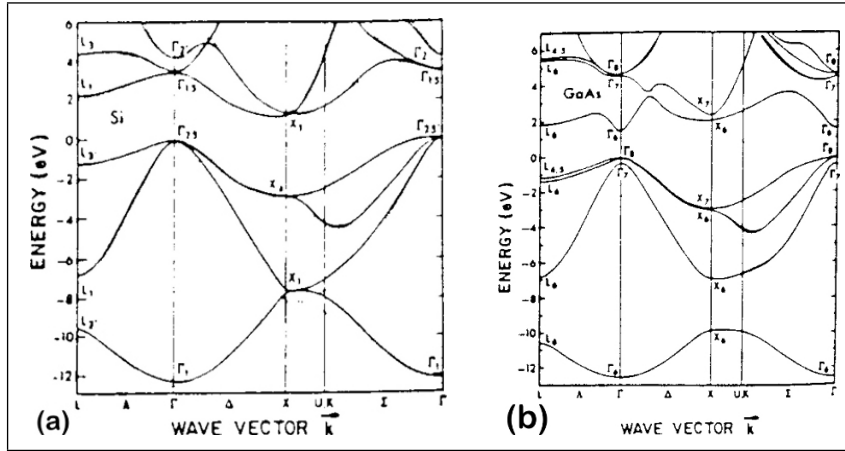


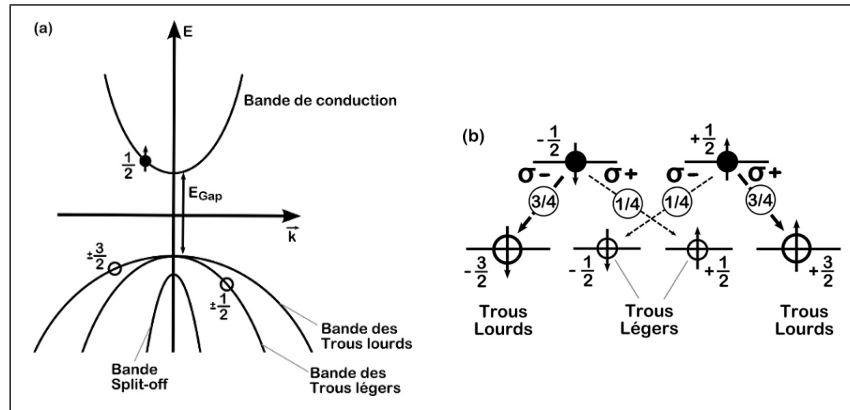
FIGURE IV.7: Structure de bandes (a) du Si et (b) du GaAs

possèdent également une masse, opposée à celle des électrons absents, et un spin qui lui est égal à ceux des électrons. Leur énergie est minimale lorsqu'ils se situent au sommet de la bande de valence.

La bande de valence étant une bande  $p$ , elle comporte trois branches, chacune étant dégénérée deux fois à cause du spin des électrons. Dans le semi-conducteur massif, deux bandes sont dégénérées en  $\vec{k} = \vec{0}$  : les bandes dites des *trous lourds* et des *trous légers*. La troisième bande, d'énergie un peu plus importante est dite bande *split-off*. La levée de dégénérescence, de l'ordre de 340 meV pour le GaAs [Žutić, 2004] est un effet du couplage spin-orbite.

La bande des trous lourds est caractérisée par la masse effective des électrons qui la composent  $m_{\text{lourds}} = 0,34 m_0$  et une valeur du moment cinétique total quantifiée suivant l'axe  $z$  :  $j_z = \pm \frac{3}{2}$ . La masse effective des électrons de la bande des trous légers vaut  $m_{\text{légers}} = 0,12 m_0$  et leur moment cinétique vaut  $j_z = \pm \frac{1}{2}$ ,  $m_0$  étant la masse de l'électron libre. Ces données sont calculées avec le paramétrage de Luttinger. La bande de conduction est constituée d'une seule branche, dégénérée deux fois par le spin de l'électron  $s_z = \pm \frac{1}{2}$ .

**Recombinaison optique dans les semi-conducteurs massifs** La recombinaison des électrons et des trous de la bande de valence est quasiment exclusivement radiative dans les semi-conducteurs à gap direct. Quand des électrons sont présents dans la bande de conduction, ils se thermalisent jusqu'à se situer au minimum de la bande puis si un trou est disponible au sommet de la bande de valence, l'électron peut retomber dans un état non-excité. La différence d'énergie est alors emportée par un photon.



**FIGURE IV.8:** (a) Extréma de la structure de bandes d'un semi-conducteur à gap direct type GaAs. (b) Règles de sélections dipolaires pour un semi-conducteur à gap direct type GaAs.

Le photon emporte également le moment de spin porté par l'électron et le trou. Puisque le photon est un boson son spin est entier et vaut donc  $\pm 1$ . La quantification du spin des photons implique que seules les transitions satisfaisant à la condition  $\Delta m_j = j_z - s_z = \pm 1$  sont permises. Ces règles de sélection pour le matériau massif sont montrées figure IV.8 : les bandes de trous lourds et trous légers étant dégénérées en  $\vec{k} = \vec{0}$ , les recombinaisons des électrons avec ces deux types de trous sont possibles. La transition  $\Delta m_j = 1$  conduisant à l'émission d'un rayonnement  $\sigma^+$ , la transition  $\Delta m_j = -1$  conduisant à l'émission d'un rayonnement  $\sigma^-$ .

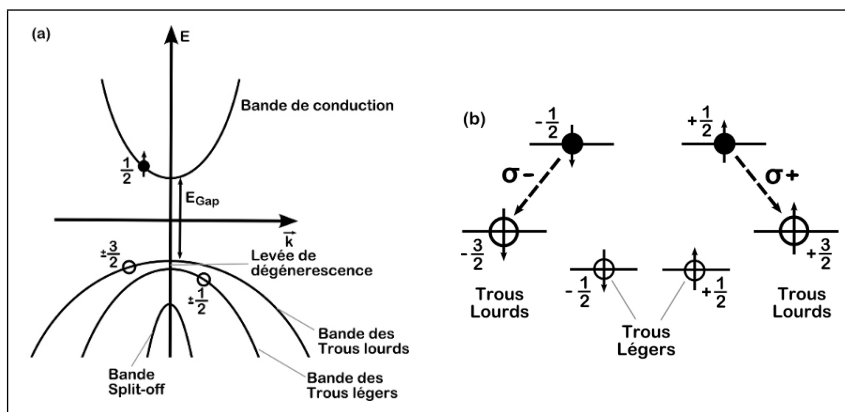
La probabilité des recombinaison électron-trou léger étant trois fois moins importante que celle électron-trou lourd, il est possible de relier la polarisation du courant injecté dans un semi-conducteur massif à la polarisation de la lumière émise suivant l'axe  $z$  lors de la recombinaison – une diode  $p-n$  simple permet de réaliser un détecteur *massif*.

$$\mathcal{P}_{spin} = \frac{j_+ - j_-}{j_+ + j_-} = \frac{(\frac{3}{4}I_{\sigma^+} + \frac{1}{4}I_{\sigma^-}) - (\frac{3}{4}I_{\sigma^-} + \frac{1}{4}I_{\sigma^+})}{(\frac{3}{4}I_{\sigma^+} + \frac{1}{4}I_{\sigma^-}) + (\frac{3}{4}I_{\sigma^-} + \frac{1}{4}I_{\sigma^+})} \quad (IV.16)$$

$$\text{d'où} \quad \mathcal{P}_{spin} = \frac{1}{2} \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}} = \frac{1}{2} \mathcal{P}_{opt}. \quad (IV.17)$$

**Règles de sélection pour les puits quantiques** L'équation IV.16 montre qu'il est possible de détecter un courant polarisé dans un semi-conducteur massif – pour peu que celui-ci présente un couplage spin-orbite suffisant pour lever la dégénérescence de la bande des trous split-off –, mais la polarisation circulaire de la lumière

Un confinement pour les électrons et les trous au lieu de recombinaison lève la dégénérescence des bandes de trous lourds et trous légers ce qui change les règles de sélection comme le montre la figure IV.9. La levée de dégénérescence est facile à comprendre : dans le cas d'un puits quantique idéal infini, la résolution de l'équation de Schrödinger nous amène à une discrétisation des niveaux d'énergie possibles, le niveau fondamental étant situé à une énergie  $E_1 = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2mL^2}$ , où  $m$  est la masse de la particule, et  $L$  la largeur du puits. Dans le cas d'un puits quantique semi-conducteur ayant pour axe de quantification [001], la bande de valence se sépare en trous lourds et en trous légers. Ces deux types de trous sont confinés dans le même puits de potentiel, mais les énergies de confinement dépendent de la masse : en considérant un puits quantique semi-conducteur idéal de largeur 10 nm, l'effet de confinement sépare à lui seul les niveaux fondamentaux des trous lourds et trous légers de 20 meV.



**FIGURE IV.9:** (a) Extréma de la structure de bandes d'un puits quantique pour un semi-conducteur à gap direct. Le confinement lève la dégénérescence trous lourds – trous légers en  $\vec{k} = \vec{0}$ . (b) Règles de sélection dipolaires pour ce type de structure.

$$\mathcal{P}_{spin} = \frac{j_+ - j_-}{j_+ + j_-} = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}} = \mathcal{P}_{opt}. \quad (\text{IV.18})$$

L'introduction du puits quantique dans une spin-LED permet donc de faire un excellent détecteur pour la polarisation du courant injecté dans un semi-conducteur.

Mais l'utilisation de ces règles de sélection impose que la détection des photons se fasse dans l'axe de la direction de confinement, c'est à dire suivant l'axe  $z$ . L'axe  $z$  doit aussi correspondre à l'axe suivant lequel les électrons injectés sont polarisés. Cette contrainte est très importante, c'est elle qui dicte l'orientation nécessaire de l'aimantation des couches magnétiques servant à injecter les spins. Ce sont les règles de sélection optique qui imposent les électrodes à aimantation perpendiculaire ou la présence d'un champ magnétique pour redresser les couches à aimantation planaire.

**c Cas des semi-conducteurs à gap indirect** Les règles de sélection sont beaucoup plus compliquées et pas bien comprises à ce jour dans les semi-conducteurs à gap direct. Pouvoir quantifier le rapport entre polarisation en spin d'un courant électrique et polarisation de la lumière émise par recombinaison dans une diode à base de silicium nécessite sans doute de gros moyens de simulation et dépasse le cadre de cette étude. Les phénomènes de recombinaison non-radiatifs dans les structures silicium seront évoqués au paragraphe c page 145.

### 1.3.2 Autres moyens de détection

Un autre moyen de détection optique des spins imaginée par Crooker *et al.* et utilisant l'effet Kerr longitudinal a été présenté au paragraphe b page 14.

## 1.4 Manipulation d'un courant polarisé

Une des étapes pour la réalisation du transistor de Datta et Das est de savoir manipuler les spins dans un canal semi-conducteur. Il existe deux méthodes pour manipuler une population de spins en mouvement dans un canal semi-conducteur : soit en appliquant un champ magnétique, soit en utilisant l'effet Rashba induit par un champ électrique, solution proposée par Datta et Das.

### 1.4.1 Manipulation de spins par un champ magnétique

Le moyen le plus simple pour manipuler un spin est d'appliquer un champ magnétique sur l'électron

Lorsqu'un champ magnétique  $\vec{B}$  est appliqué sur un moment magnétique  $\vec{m}$ , il exerce sur celui-ci un couple  $\vec{\Gamma}$ . En absence d'amortissement, l'équation fondamentale de la dynamique s'écrit alors :

$$\frac{d\vec{L}}{dt} = \vec{\Gamma} = \vec{m} \wedge \vec{B} \quad (\text{IV.19})$$



Or le moment magnétique est relié au moment cinétique de spin par  $\vec{m} = \gamma \vec{L}$  ou  $\gamma = -\frac{ge\hbar}{2m}$  est le facteur gyromagnétique dépendant du facteur de Landé  $g \approx 2$  pour les électrons libres, de  $e$  la charge de l'électron et de  $m$  sa masse. L'équation IV.19 page ci-contre s'écrit alors :

$$\frac{d\vec{m}}{dt} = \gamma \vec{m} \wedge \vec{B} \quad (\text{IV.20})$$

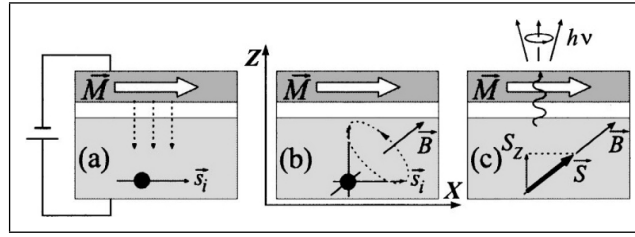
Dans cette équation, il est manifeste que  $\frac{d\vec{m}}{dt}$  est perpendiculaire à  $\vec{m}$  et à  $\vec{B}$ , cela impliquant que la norme de  $\vec{m}$  est constante et que l'angle entre  $\vec{B}$  et  $\vec{m}$  est constant. La solution, lorsque le mouvement n'est pas amorti, est donc un mouvement de précession du moment autour du champ magnétique à la pulsation  $\omega$  donnée par :

$$\omega = |\gamma B| = \left| \frac{ge\hbar}{2m} B \right| \quad (\text{IV.21})$$

Réaliser un transistor à spins dans un canal semi-conducteur fonctionnant grâce à la précession de spin sera possible dès lors que l'injection *et* la détection électrique en configuration locale par des électrodes ferromagnétiques sera réalisée. Il faut pour cela appliquer un champ magnétique perpendiculaire à la direction d'aimantation des électrodes, suffisant pour faire précesser les spins de  $\pi$  lors de leur trajet dans le canal. L'application ou non du champ magnétique permet alors avec deux électrodes dans un état d'aimantation donné de passer d'un état passant à un état non passant. Son utilisation pour manipuler des spins dans une vanne de spin entièrement métallique a été démontrée par Jedema *et al.* [Jedema, 2002].

La précession de spins autour d'un champ magnétique a été astucieusement utilisé dans l'étude de l'injection de spins dans les semi-conducteurs par Motsnyi *et al.* [Motsnyi, 2002]. Pour détecter optiquement des spins injectés dans une spin-LED, il est nécessaire que ceux-ci soient dans la direction de confinement du puits quantique (voir partie 1.3 page 124). Dans la plupart des études de la littérature, les spins sont injectés perpendiculairement au plan de croissance en usant d'un fort champ magnétique pour redresser l'aimantation d'une électrode planaire. Motsnyi *et al.* ont injecté des spins depuis une électrode planaire puis utilisé un champ oblique (voir figure IV.10 page suivante) pour les faire précesser de  $\lambda/4$  avant d'atteindre la zone de recombinaison. Ils ont ainsi pu valider en une étape l'injection et la manipulation de spins via effet Hanle dans le GaAs.

Une illustration spectaculaire de l'effet Hanle a été montrée par Huang *et al.* [Huang, 2007] grâce au transport d'électrons chauds dans le silicium.



**FIGURE IV.10:** D'après [Motsnyi, 2002]. Schéma du dispositif proposé par Motsnyi et al. pour injecter puis détecter des spins dans le GaAs. (a) En absence de champ magnétique, les spins ne sont pas détectés. (b) Lorsque le champ magnétique augmente, les spins commencent à précesser autour de la direction de  $\vec{B}$ . En raison du déphasage entre les spins, le signal détecté est faible. (c) Pour un champ magnétique suffisamment fort, l'ensemble du cône de précession autour de la direction du champ appliqué est occupé, l'orientation moyennée des spins détectés suit celle du champ magnétique.

#### 1.4.2 Manipulation de spins par un champ électrique

Appliquer un champ magnétique est le moyen le plus simple pour manipuler des spins dans un canal semi-conducteur. Cependant, cette option n'est pas réalisable si le but est d'intégrer des dispositifs manipulant le spin dans une application technologique. La proposition de transistor à spin formulée par Datta et Das [Datta, 1990] en 1990 tient compte de cette problématique et son intérêt réside entre autre dans le moyen de manipuler les spins par un champ électrique via l'*effet Rashba*.

Dans un gaz d'électrons bidimensionnel confiné dans un canal semi-conducteur à faible gap, l'effet Rashba induit un décalage énergétique des canaux de spins up et down en absence de champ magnétique. Le terme Rashba qui apparaît dans l'Hamiltonien pour des électrons confinés suivant la direction  $y$  est :

$$H = \eta(\sigma_z k_x - \sigma_x k_z) \quad (\text{IV.22})$$

où  $\eta$  est le terme de couplage spin-orbite,  $k_{i,i=x,z}$  les vecteurs d'onde suivant les directions  $x$  ou  $z$  et  $\sigma_{i,i=x,z}$  les matrices de Pauli. En considérant des électrons se propageant suivant la direction  $+x$  et en prenant l'axe  $z$  comme axe de polarisation des électrons, cet Hamiltonien conduit un décalage  $E_R = \eta\sigma_z k_x$  des deux canaux de spins – les spins up voyant leur énergie augmenter d'un facteur  $\eta k_x$ , les spins down diminuer de la même valeur. Les électrons polarisés up et down de même

énergie ont donc deux vecteurs d'onde différents  $k_{1x}$  et  $k_{2x}$ .

$$E_{|+\rangle} = \frac{\hbar^2 k_{1x}^2}{2m^*} - \eta k_{1x} \quad (\text{IV.23})$$

$$E_{|-\rangle} = \frac{\hbar^2 k_{2x}^2}{2m^*} + \eta k_{2x} \quad (\text{IV.24})$$

où  $m^*$  est la masse effective de l'électron dans le canal semi-conducteur. On en déduit pour deux électrons de même énergie :

$$k_{1x} - k_{2x} = \frac{2m^*\eta}{\hbar^2} \quad (\text{IV.25})$$

$$\Delta\theta = (k_{1x} - k_{2x})L = \frac{2m^*\eta L}{\hbar^2} \quad (\text{IV.26})$$

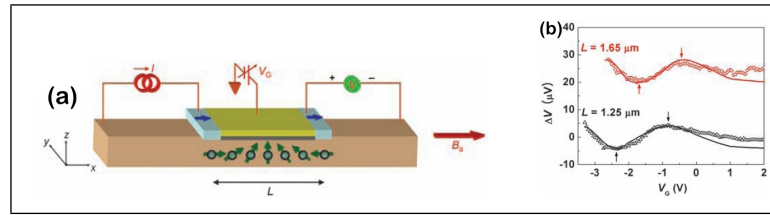
$\Delta\theta$  est le déphasage obtenu pour deux électrons de même énergie mais de polarisation inverse parcourant un canal de longueur  $L$ . Le coefficient de couplage spin-orbite  $\eta$  est proportionnel au champ électrique lié aux effets de surface dus à la structure bidimensionnelle du canal semi-conducteur, comme démontré par Lommer *et al.* [Lommer, 1988]. L'intérêt de ce système est que ce coefficient peut être modulé par l'application d'une tension de grille sur le canal.

Pouvoir réaliser un transistor à spin nécessite de savoir déphaser les deux signaux de  $\pi$  le long du canal bidimensionnel. Une valeur de  $\eta \approx 3,9.10^{-12} \text{ eV.m}$  dans une hétérostructure InGaAs/InAlAs montrée par Das *et al.* [Das, 1989] conduit à un tel déphasage pour une longueur de  $0,67 \mu\text{m}$ . Cette longueur est compatible avec les longueurs de diffusion de spin trouvée dans de tels matériaux, typiquement quelques micromètres : par exemple  $l_{sf}^{\text{GaAs}} = 2 \mu\text{m}$  à 300 K [Fert, 2001]. Pour le transport dans le silicium, un canal de  $Si_{1-x}Ge_x$  sur  $Si_{1-y}Ge_y$  avec des valeurs de  $x$  et  $y$  adaptées pour réaliser un puits quantique [Jantsch, 2005] pourrait être une piste à explorer pour réaliser de tels systèmes, en profitant de la longueur de diffusion de spin dans le silicium liée au couplage spin-orbite du germanium.

Un exemple de manipulation de spin par effet Rashba dans un canal d'InAs a été démontré très récemment par Koo *et al.* [Koo, 2009]. En injectant et détectant électriquement des spins en configuration non-locale depuis des électrodes de nickel-fer dans un gaz d'électrons bidimensionnel confiné dans un film d'InAs, ils montrent des modulations de la tension de collection en fonction de la tension de grille appliquée. Cet effet est directement lié à la précession des spins due à l'effet Rashba.

## 2 Injection de spins dans le GaAs

Une fois acquise l'épitaxie de structures MgO/FePt à aimantation perpendiculaire sur GaAs, nous nous sommes fixé deux objectifs. Premièrement de valider



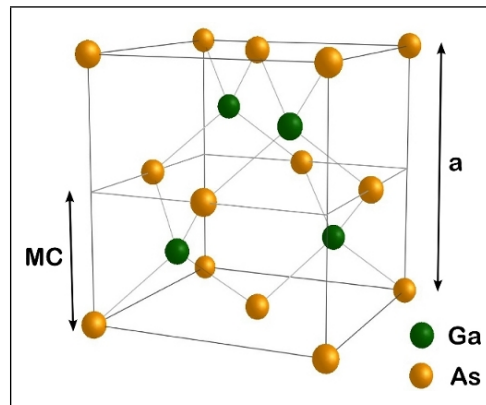
**FIGURE IV.11:** D'après [Koo, 2009] **(a)** Schéma du dispositif utilisé par Koo *et al.* pour l'injection, la détection et la manipulation de spin dans un gaz d'électrons bidimensionnel. La tension mesurant l'accumulation de spins est représentée à droite sur le schéma. **(b)** Variation de la tension de collection en fonction de la tension de grille appliquée pour deux canaux de longueurs différentes.

l'injection de spins depuis l'électrode ferromagnétique vers le semi-conducteur en détectant optiquement le courant polarisé à l'aide d'une spin-LED et deuxièmement de détecter l'injection de spins en utilisant l'effet Kerr polaire comme présenté par Crooker *et al.* en 2005 [Crooker, 2005] mais sans nécessairement appliquer de champ magnétique grâce aux électrodes à aimantation perpendiculaire. Maîtriser l'épitaxie du GaAs était nécessaire pour réaliser le deuxième objectif, ce qui est présenté dans la section 2.1.2 page suivante.

## 2.1 Le GaAs

### 2.1.1 Structure cristallographique

Le GaAs fait partie des semi-conducteurs dits III-V qui sont des matériaux dont la matrice est constituée d'un élément de la V<sup>ème</sup> colonne du tableau périodique des éléments et d'un élément de la III<sup>ème</sup> colonne. Parmi tous les composés binaires ou ternaires possibles – ces derniers étant obtenus par substitution partielle de l'un des éléments par un autre élément de la même colonne –, tous n'ont pas les mêmes propriétés. Ainsi GaAs ou InAs sont des semi-conducteurs à gap direct alors que GaP ou AlAs ne le sont pas. Dans le cas d'un alliage ternaire, comme  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  par exemple, la composition  $x$  va déterminer les propriétés. Ainsi, les matériaux  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  présentent une transition entre un gap direct et un gap indirect pour une composition en aluminium de l'ordre de  $x = 0,35$ . Tous les semi-conducteurs III-V utilisés dans la littérature pour constituer les systèmes spin-LED sont choisis pour leurs bonnes propriétés optiques et les alliages ternaires utilisés sont proches du composé binaire GaAs.



**FIGURE IV.12:** Schéma de la maille Zinc-Blende du GaAs. Le paramètre de maille  $a$  est double de la distance entre deux plans atomiques identiques qui constituent une monocouche MC.

Les composés III-V du type GaAs, InAs ou AlAs cristallisent selon la structure Zinc-Blende montrée figure IV.12, structure appelée aussi *sphalérite*. Cette structure se compose de deux réseaux cubiques faces centrées. L'un est occupé par des anions de la V<sup>ème</sup> colonne, l'autre par des cations de la III<sup>ème</sup> colonne. Ces deux réseaux sont décalés l'un par rapport à l'autre du quart de la diagonale principale, c'est à dire  $a\frac{\sqrt{3}}{4}$  où  $a$  représente le paramètre de maille du matériau. Celui-ci vaut 5,653 Å pour le GaAs.

### 2.1.2 Croissance du GaAs par Epitaxie par Jets Moléculaires

L'étude de l'injection de spins dans le GaAs nous a conduit à envisager plusieurs configurations pour le transport et la détection de courant polarisé. Un des buts fixés au début du travail de thèse était d'observer l'injection de spins en configuration latérale comme ce qu'ont présenté Crooker *et al.* [Crooker, 2005]. Cette configuration aurait éventuellement permis d'étudier la manipulation de spins via l'effet Hanle ou Rashba, le dispositif de détection des spins par effet Kerr polaire avait été monté par David Ferrand de l'institut Néel. La croissance complète de ces échantillons ainsi que leur mise en forme n'a pas été entreprise avant la validation de l'injection de spin dans le GaAs grâce à la détection via une spin-LED. Cette validation n'ayant jamais été acquise, l'étude prévue n'a pas été menée à son terme.

Pour réaliser ces expériences il est nécessaire de disposer de substrats de GaAs non dopés sur lesquels sont épitaxiées des couches dopées  $n$  de différentes épaisseurs pour canaliser le courant polarisé. Le moyen le plus simple pour obtenir de telles couches et pour faire varier les paramètres de dopage et d'épaisseur sans

contraintes est de développer la croissance de ces structures. Cette partie présente les travaux de croissance réalisés sur le bâti de semi-conducteurs III-V.

La maîtrise de la croissance de GaAs dopé  $n$  aurait aussi permis de reprendre l'épithaxie sur les spin-LED dont nous disposons afin d'étudier la longueur de cohérence de spin dans le GaAs.

**a Bâti utilisé** Le bâti utilisé est celui brièvement présenté dans la section 1.1.3 page 27.

## **b Croissance**

**Préparation des substrats** Comme toute croissance par Epithaxie par Jets Moléculaires, la qualité du dépôt dépend de l'état de surface du substrat. Un nettoyage chimique poussé est nécessaire pour le dégraisser convenablement. L'échantillon subit quatre bains successifs, un premier de Trichloroéthane bouillant suivi d'un bain de ce même produit mais à température ambiante. Un nettoyage acétone et alcool est ensuite réalisé.

Dans les bâtis de croissance, les échantillons sont généralement collés à l'Indium sur molybloc. Cette technique n'est pas adaptable dans notre cas puisqu'elle nécessite de chauffer à l'air libre l'ensemble à une température d'environ 200°C. A cette température, la couche d'arsenic amorphe déposée pour protéger la surface de l'échantillon recristallise. Il ne serait alors pas possible une fois le dépôt terminé de décoller l'échantillon sans endommager cette couche. La technique de collage à l'indium n'est donc pas envisageable dans ce cas. La solution pour fixer l'échantillon est un système de fixation mécanique. L'inconvénient majeur de ce système est un contact thermique de moins bonne qualité qu'avec un collage indium, le gradient et l'inertie thermique induits par ce système étant difficile à évaluer.

**Désoxydation des substrats** La croissance de la couche de GaAs commence par une première étape de désoxydation du substrat. Après nettoyage et introduction, l'échantillon n'est pas prêt pour la reprise épithaxiale. Son passage à l'air a en effet oxydé la surface et des traces d'eau ou de polluants divers sont présentes. Il est alors nécessaire de désorber l'oxyde natif en montant la température du substrat entre 600°C et 630°C [SpringThorpe, 1987]. Cette désoxydation se fait en contrôlant l'état de la surface grâce au RHEED.

Les températures de désorption se situent légèrement au-dessus de la température de sublimation congruente du GaAs – environ 600°C [Foxon, 1973] ; le flux d'évaporation de l'arsenic devient plus important que le flux d'évaporation du gallium. Le GaAs se décompose et des gouttelettes de gallium mouillant mal à la

surface se forment. Pour éviter ce phénomène et désorber l'oxyde en préservant une bonne qualité de surface, le chauffage a lieu sous flux d'arsenic afin d'équilibrer les flux totaux d'évaporation en éléments III et V. De cette façon, le GaAs continue à se sublimer mais de façon congruente. Lors du passage à la température de désoxydation, le RHEED laisse apparaître des taches beaucoup plus intenses. Il est important de déterminer précisément cette température car elle nous servira de référence pour ajuster ensuite la température de croissance des couches, en s'affranchissant des différences éventuelles entre la température mesurée par le thermocouple et la température réelle du substrat – celle-ci varie en fonction du support utilisé et de la manière dont est fixée l'échantillon.

En pratique la désoxydation d'un échantillon se fait avec le protocole suivant :

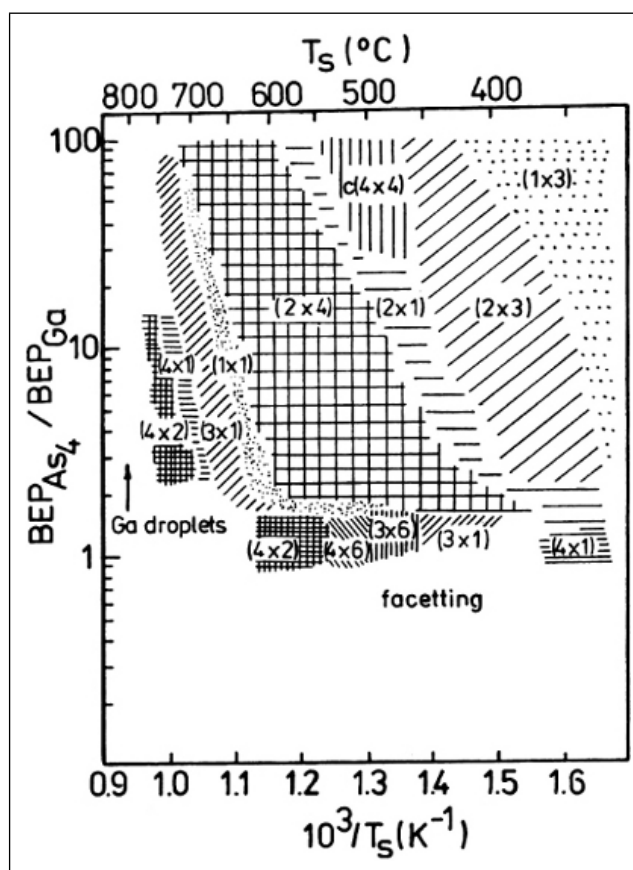
- La température du substrat est montée rapidement – 15 à 20°C/min – jusqu'à environ 400°C. Le cache de la cellule d'arsenic est ouvert afin qu'il soit en excès en surface au moment du passage de la température de congruence. Pendant toute cette phase, le diagramme RHEED reste très flou.
- A la température de désorption de l'oxyde le diagramme RHEED devient assez rapidement plus brillant et des taches apparaissent : l'oxyde commence à se désorber et la surface légèrement tridimensionnelle du cristal de GaAs apparaît.
- Une température légèrement supérieure à la température de désoxydation est maintenue pendant environ dix minutes puis celle-ci est abaissée à 10°C sous cette température pour démarrer le dépôt.

**Couche tampon** La croissance proprement dite commence toujours par le dépôt d'une couche tampon pour lisser la surface après sa désoxydation. La croissance de la couche tampon est une croissance dans les conditions standards d'une épaisseur de quelques centaines de nanomètres de GaAs non dopé. La reprise épitaxiale sur la surface désoxydée est caractérisée par un passage temporaire sur quelques nanomètres à une croissance tridimensionnelle qui se lisse en général au bout d'une minute à une minute et demi pour une vitesse de croissance de l'ordre de  $1 \text{ MC.s}^{-1}$ . La figure de diffraction RHEED permet d'évaluer l'état de la surface de l'échantillon, une surface parfaitement bidimensionnelle étant caractérisée par des tiges fines continues. La rugosité se traduit par des tiges *pointées* et même uniquement des *points* de diffraction lorsque la rugosité est du même ordre de grandeur que la longueur de cohérence du faisceau d'électrons du RHEED, soit quelques dizaines de nanomètres.

**Croissance d'une couche bidimensionnelle de GaAs** Une façon simple de se représenter la croissance de couches bidimensionnelles semi-conductrices III-As, est de considérer que tous les atomes incidents du groupe III *collent* à la surface du composé III-V sur lequel on effectue la croissance, tandis que seuls les atomes V nécessaires à la formation stœchiométrique de la couche III-V adhèrent à la

surface. La vitesse de croissance du GaAs est donc gouvernée par le flux de gallium incident.

De plus, la croissance s'effectue à une température – environ 610°C – supérieure à la température de sublimation congruente au-delà de laquelle l'arsenic est désorbé préférentiellement, provoquant une dégradation de la surface épitaxiée. Pour éviter cette dégradation de la surface par sublimation de l'arsenic, la croissance est effectuée en régime d'excès d'As – appelé aussi régime *riche-As*. La manière la plus simple pour s'assurer que la croissance se fait sous excès d'arsenic est d'observer par diffraction RHEED la reconstruction de surface de l'échantillon. La figure IV.13 extraite d'un travail de Daweritz *et al.* [Däweritz, 1990] montre en effet la reconstruction de surface observable du GaAs au cours de la croissance en fonction des rapports de flux de gallium et d'arsenic et de la température du substrat.



**FIGURE IV.13:** D'après [Däweritz, 1990]. Reconstructions de surface du GaAs en fonction de la température et des pressions relatives d'arsenic et de gallium en cours de croissance.



Outre l'étude des reconstructions de surface, le RHEED permet aussi de déterminer les vitesses de croissance du GaAs comme expliqué dans la figure II.3 page 28. Dans toutes les épitaxies réalisées, la vitesse de dépôt a été fixée à  $0,5 \text{ MC.s}^{-1}$  soit  $1,14 \text{ Å.s}^{-1}$  car les calibrations de dopage sont faites pour ce taux de dépôt. L'étalonnage de la vitesse de dépôt en fonction des températures des cellules est effectué de façon régulière. La croissance de la couche témoin est réalisée à une température donnée  $T_0$ , une loi semi-empirique permet alors de relier le flux de matière à la température de cellule :

$$\Phi(T) = \Phi(T_0) e^{\frac{T-T_0}{E_A}} \quad (\text{IV.27})$$

où  $E_A$  est une énergie d'activation dépendant du matériau.

**Mesure et étalonnage du dopage** Le dopant  $n$  utilisé dans les couches de GaAs est le silicium, élément tétravalent qui substitue certains atomes d'arsenic trivalent fournissant ainsi un électron dans la bande de conduction<sup>5</sup>. Le réglage de la température de la cellule permet de faire varier le flux d'atomes de silicium incorporés à la couche et ainsi d'atteindre les taux de dopage souhaités – compris entre  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$  et  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . Plusieurs échantillons témoins sont réalisés à des températures de cellule différentes mais à vitesse de croissance constante ; sur ces échantillons le dopage est mesuré par effet Hall. Grâce à ces mesures une courbe reliant la température de la cellule de silicium au taux de dopage est tracée, cette courbe sert à estimer le dopage des couches épitaxiées pour l'injection.

**Préparation au changement de bâti** Une fois la croissance de la couche de GaAs terminée, il convient de protéger la surface de l'échantillon avant de le sortir à l'air pour le transférer dans le bâti d'épitaxie des métaux. La solution retenue pour protéger cette surface de l'oxydation est de déposer une couche d'arsenic amorphe. Pour reprendre la croissance sur la surface souhaitée de GaAs il suffit ensuite de chauffer l'échantillon, l'arsenic se sublime et les différentes reconstructions du GaAs apparaissent successivement.

L'arsenic se dépose en un film amorphe lorsque la température du substrat est inférieure à  $-10^\circ\text{C}$ . Pour obtenir de telles conditions, l'échantillon est refroidi par radiation des panneaux froids à l'azote liquide. Le temps nécessaire pour atteindre cette température étant de plusieurs heures, le dépôt d'arsenic amorphe se fait généralement après une nuit d'attente.

L'épaisseur nécessaire pour avoir une couche complètement amorphe sans aucune tige visible au RHEED dépend fortement de la température à laquelle est déposée l'arsenic, les épaisseurs typiques sont de l'ordre de quelques nanomètres.

---

5. Pour une approche complète de la théorie du dopage des semi-conducteurs, le lecteur pourra se reporter à l'ouvrage de référence de Sze [Sze, 1981]

Un exemple, à  $-27,2^{\circ}\text{C}$ , la couche est parfaitement amorphe en 45 secondes de dépôts tandis qu'il faut plus de trois minutes pour obtenir ce même résultat à  $-5^{\circ}\text{C}$ . L'épaisseur d'arsenic amorphe n'est pas un paramètre important pour la protection de la surface de GaAs.

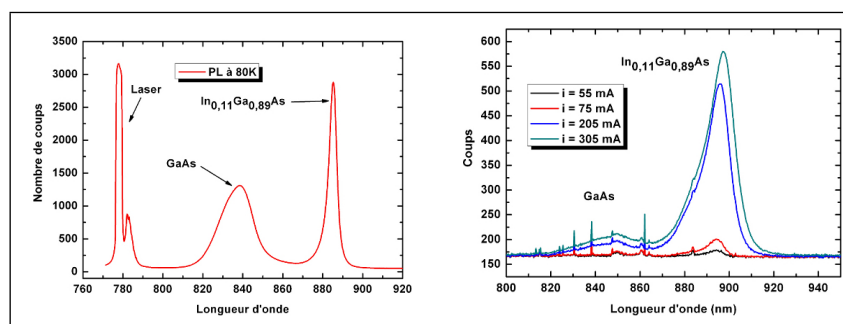
## 2.2 Etude pour l'injection de spin

### 2.2.1 Détecteur envisagé

Pour détecter le courant polarisé en spin injecté dans le GaAs depuis l'électrode MgO/FePt, nous avons décidé d'utiliser une spin-LED d'InGaAs/GaAs dont la structure est présentée figure IV.6 page 125. Plusieurs spin-LED identiques ont été épitaxiées par Alexandre Arnoult du LAAS – *Laboratoire d'Analyse et d'Architecture des Systèmes* – à Toulouse.

### 2.2.2 Propriétés optiques

**a Mesures de photoluminescence** La qualité des différentes spin-LEDs dont nous disposons a été estimée par des mesures de photoluminescence. Les courbes de luminescence de la structure sur laquelle ont été réussies les épitaxies d'injecteur sont présentées figure IV.14. La courbe de photoluminescence a été faite sans électrode supérieure.

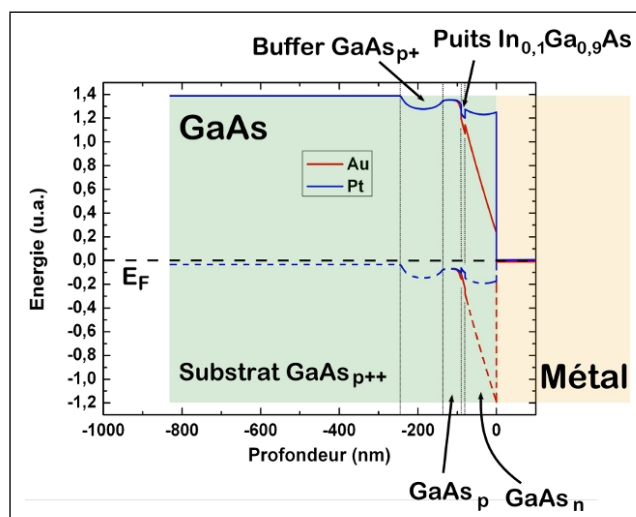


**FIGURE IV.14:** (a) Courbe de photoluminescence de la spin-LED de GaAs à 80 K (b) Courbe d'électroluminescence de la spin-LED de GaAs à 80 K en fonction du courant appliqué

Les courbes d'électroluminescence présentées n'ont été obtenues qu'une seule fois sur un échantillon avec une électrode semi-transparente de platine et un contact en or.

**b Tentatives d'électroluminescence** L'étude de l'injection de spins dans le GaAs n'a pu aboutir pour une raison qui peut sembler étrange : il nous a été impossible de faire électroluminescer les spin-LED fournies par le LAAS. Le détecteur de spins ne fonctionnant pas, cette étude n'a pu être menée.

L'étude de la luminescence des spin-LEDs n'a pas été concluante. Sur un banc d'optique simple permettant d'étudier simultanément la photoluminescence et l'électroluminescence – différents tests ont été menés pour parvenir à faire fonctionner les structures. Des simulations de structure de bandes (voir la figure IV.15) avec le logiciel libre *Nextnano*<sup>3 6</sup> ont permis de déterminer quels étaient les métaux les plus favorables pour l'électroluminescence. De nombreux tests pour contacter les échantillons ont également été testés : échantillons pleine plaque ou avec des motifs réalisés par lithographie optique, contacts épais ou semi-transparents, ....



**FIGURE IV.15:** Structure de bandes de la spin-LED de GaAs au contact de l'or ou du platine. Les niveaux de Fermi s'ajustent, en raison d'un travail de sortie différent pour les deux métaux, les bandes de conduction – trait plein – et de valence – trait pointillé – de la spin-LED sont plus ou moins “tordues”.

L'électroluminescence des spin-LED a été observée uniquement deux fois, sans que cela puisse être expliqué. Les contacts en face avant étaient chaque fois constitués d'une couche semi-transparente de platine – cinq nanomètres environ – et d'un point d'or plus épais sur lequel était contactée l'amenée de courant. Ces deux observations n'ont pas pu être reproduites, sans doute étaient-elles dues à une inhomogénéité locale du puits, de meilleure qualité au lieu du contact.

6. <http://www.nextnano.de/nextnano3/>

La seule observation reproductible liée à l'électroluminescence a été de la photoluminescence *assistée* : lorsqu'une tension est appliquée sur l'échantillon excité par un rayonnement laser, le pic de photoluminescence du puits quantique augmente très sensiblement. Cela s'explique par un meilleur confinement des électrons et trous photo-crées dans le puits. Cette observation nous a conduit à l'hypothèse que l'absence d'électroluminescence pouvait être liée à un manque de porteurs dans la couche dopée  $n$ , soit qu'elle soit trop mince soit trop faiblement dopée. Ainsi il n'y aurait pas assez de porteurs pour parvenir à l'électroluminescence. Cette hypothèse n'a pas été vérifiée plus complètement.

### 2.3 Conclusion sur l'injection dans le GaAs

Entre le mois de décembre 2007 et le mois d'avril 2008, de nombreuses spin-LED de GaAs ont été testées en électroluminescence avec une électrode semi-transparente comme contact supérieur sans obtenir de succès. Les variations entre ces substrats concernaient les épaisseurs et taux de dopage  $n$  des couches supérieures ainsi que la richesse en indium du puits d'InGaAs. Devant l'impossibilité de faire fonctionner les détecteurs, cette étude a été définitivement abandonnée en avril 2008. N'ayant pu valider l'injection de courant polarisé dans le GaAs, nous avons également abandonné les expériences de détection de spins dans le semi-conducteur par effet Kerr polaire.

A ce jour nous n'avons pas trouvé de raison parfaitement convaincante pour expliquer cette absence d'électroluminescence. L'hypothèse formulée au paragraphe b page précédente n'est pas vérifiée et il n'est pas possible d'exclure le fait que les spin-LED fonctionnaient mais que l'absence de signal soit dû à la manière de prendre des contacts.

## 3 Injection et détection optique de spins dans le silicium

### 3.1 Généralités sur les alliages Si/SiGe

Le silicium et le germanium sont des semi-conducteurs dits IV-IV ou du *type diamant*, car ils possèdent la structure cristallographique de ce dernier. Ils sont constitués uniquement d'atomes de la IV<sup>ème</sup> colonne du tableau de Mendeleïev. Les matériaux semi-conducteurs usuels de la IV<sup>ème</sup> colonne sont le carbone, le silicium, le germanium et l'étain. Ces atomes comportent un nombre croissant d'électrons de cœur, et quatre électrons de valence,  $s^2p^2$ . Dans la structure diamant, chaque atome a quatre voisins : il établit avec chacun d'eux une liaison covalente, occupée par deux électrons. Le nuage électronique de chaque atome est donc formé de huit électrons de valence, chaque électron étant commun à deux atomes. Lorsqu'on

accroît la masse atomique – du carbone à l'étain – la distance entre deux atomes voisins augmente et le gap du semi-conducteur diminue. Le diamant est un semi-conducteur à grand gap, le silicium et le germanium ont un gap moyen et l'Etain est un semi-métal à gap nul – le niveau de Fermi tombe dans une bande d'énergie, mais à une énergie où la densité d'états est nulle. Les semi-conducteurs issus d'éléments de la IV<sup>ème</sup> colonne du tableau de Mendeleïev possèdent tous un gap indirect.

### 3.1.1 Intérêt de ces alliages

De prime abord, l'intérêt de l'étude du transport polarisé en spin dans le silicium est évident dans l'optique d'éventuelles applications à cause de la prépondérance de ce matériau dans l'industrie des semi-conducteurs. Mais ces matériaux présentent également de grands intérêts pour la recherche fondamentale en particulier grâce aux grands temps de vie de spin qui y sont attendus. La section 1 page 114 a en effet permis de montrer l'importance du couplage spin-orbite dans les propriétés de transport de courant polarisé dans les semi-conducteurs. Les structures à base de silicium et silicium-germanium permettent de combiner le très faible couplage spin-orbite dans le silicium favorable pour avoir des temps de vie de spin longs à celui un peu plus fort du germanium permettant de détecter et éventuellement manipuler les spins dans ces matériaux.

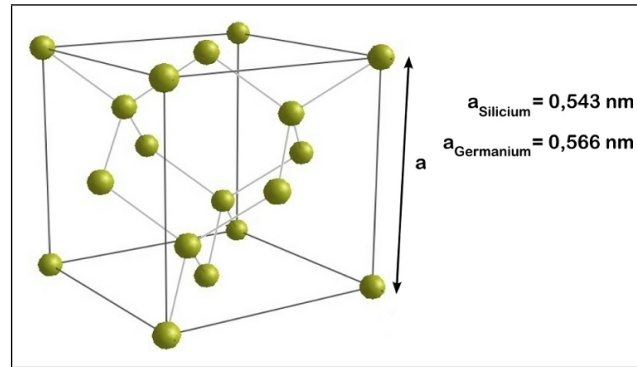
### 3.1.2 Structure cristallographique

Le germanium et le silicium cristallisent tous deux dans la structure du diamant. Le réseau du diamant est cubique à faces centrées, il comporte deux sous-réseaux avec des atomes identiques placés en (000) et  $(\frac{1}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4})$ . La maille primitive comporte deux atomes et la maille élémentaire traditionnelle telle que présentée figure IV.16 page suivante en comporte huit. Les paramètres de maille du silicium et germanium valent respectivement  $a_{\text{silicium}} = 5,43 \text{ \AA}$  et  $a_{\text{germanium}} = 5,65 \text{ \AA}$  à 300 K.

La croissance de l'alliage de  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  se fait de manière désordonnée, les atomes des deux sortes se plaçant aléatoirement sur les sites du cristal. Le paramètre de maille de l'alliage à 300 K vaut [Dismukes, 1964] :

$$a_{\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x} = 5,431 + 0,20x + 0,027x^2 \text{ \AA} \quad (\text{IV.28})$$

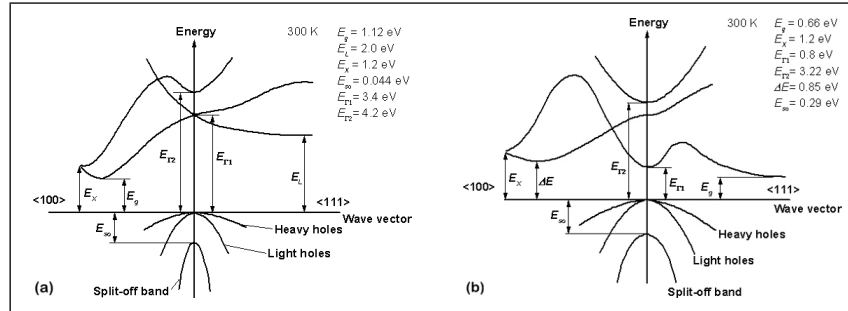
Les matériaux cristallisés dans cette structure, que ce soient des matériaux purs ou alliages, appartiennent au groupe de symétrie  $Oh^7 - Fd3m$ . Ils possèdent donc un centre de symétrie d'inversion, ce qui joue un rôle capital dans le cadre du transport polarisé en spin puisque le mécanisme de dépolarisation Dyakonov-Perel présenté au paragraphe b page 117 ne s'applique pas. Cette symétrie d'inversion est en partie responsable des longs temps de vie de spins dans le silicium.



**FIGURE IV.16:** Structure cristallographique du silicium et du germanium

### 3.1.3 Structure de bandes

**a Matériaux massifs** Le silicium et le germanium sont des semi-conducteurs à gap indirect. Cela signifie que, contrairement à ce qui a été présenté dans la partie b page 126, le minimum de la bande de conduction ne se situe pas en  $\vec{k} = \vec{0}$ . Comme le maximum de la bande de valence se situe en ce point, faire passer un électron de la bande de valence à la bande de conduction avec l'énergie minimale nécessite de lui transmettre également un moment non nul. Ce moment est apporté par un phonon du réseau.



**FIGURE IV.17:** D'après [IOFFE, 2010]. Structure de bandes au voisinage du gap pour (a) le silicium et (b) le germanium

L'énergie de gap de la structure de bandes des semi-conducteurs constitués d'alliage de plusieurs matériaux peut généralement s'obtenir en première approximation comme le barycentre des énergies des différents matériaux. La détermination du gap indirect d'alliages réalisés à partir de silicium et germanium est plus complexe, les minima de bandes de conduction pour les deux matériaux n'étant pas dans la même direction. La figure IV.17 page ci-contre montre que ce mini-

mum se situe dans la direction [100] pour le silicium et dans la direction [111] pour le germanium.

La valeur du gap d'un alliage  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  relaxé a été proposée par Rieger *et al.* [Rieger, 1993] :

$$E_g(x) = (1,155 - 0,43x + 0,206x^2) \text{ eV} \quad \text{pour } 0 < x < 0,85 \quad (\text{IV.29})$$

$$E_g(x) = (2,010 - 1,27x) \text{ eV} \quad \text{pour } 0,85 < x < 1 \quad (\text{IV.30})$$

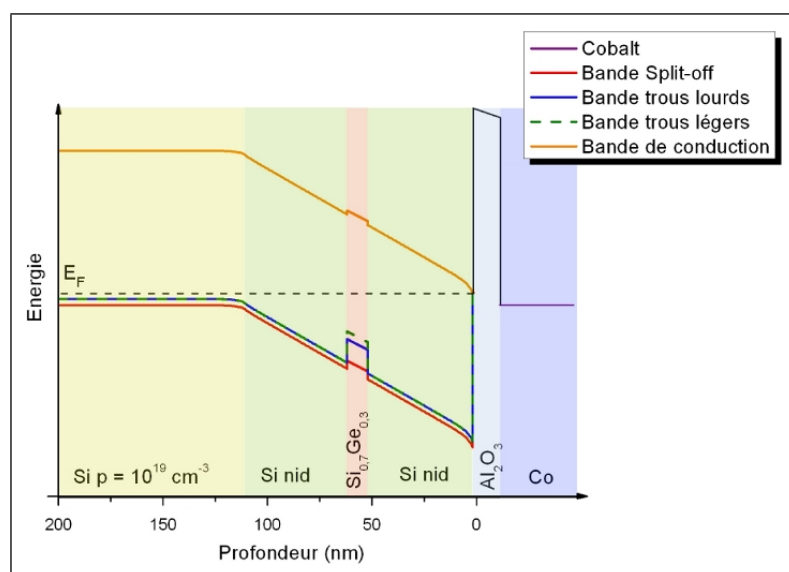
La discontinuité dans l'évolution de l'énergie de gap pour une concentration en germanium de 85% est liée au changement de vallée de conduction [Penn, 1999].

**b Structures quantiques** Les structures utilisées pour la détection de spins sont des puits de silicium-germanium ou des boîtes de germanium enterrées dans une diode p-i-n de silicium. Le gap du germanium étant plus faible que celui du silicium, ces zones forment un puits de potentiel pour les porteurs. Une description plus détaillée des offsets de bandes montre en réalité que, pour le puits de  $\text{Si}_{0,7}\text{Ge}_{0,3}$ , seuls les trous sont confinés. Une simulation de la structure de bande du puits de SiGe présenté dans le tableau IV.21 page 149 est représentée figure IV.18 page suivante. Cette simulation réalisée à l'aide du logiciel *Nextnano*<sup>3 7</sup> montre les minimum de la bande de conduction et maxima de la bande de valence pour la structure  $\text{Si } p = 10^{19} \text{ cm}^{-3} / \text{Si } (50 \text{ nm}) \text{ nid} / \text{Si}_{0,7}\text{Ge}_{0,3} 10 \text{ nm} / \text{Si } (50 \text{ nm}) \text{ nid} / \text{Al}_2\text{O}_3 / \text{Co}$ .

La hauteur de la barrière que forme le puits de SiGe pour les électrons de la bande de conduction est de 43 meV à 5 K, 41 meV à 77K et 28 meV à 300 K. L'énergie de barrière est donc plus faible que l'agitation thermique des électrons à température ambiante mais pas à basse température. Cette barrière peut donc accentuer la localisation de la recombinaison électron-trou en bord de puits, localisation responsable du pic de luminescence sans phonon (voir le paragraphe c). Ce résultat est cependant à prendre avec précaution puisqu'il s'agit d'une simulation très simple pour une structure contrainte sans défaut alors que le puits de SiGe utilisé est partiellement relaxé (voir a page 151).

**c Recombinaison assistée par phonons** La figure IV.17 page précédente montre que dans les semi-conducteurs à gap indirect le minimum de la bande de conduction ne se situe pas en  $\vec{k} = \vec{0}$  contrairement au maximum de la bande de valence. Le mécanisme de recombinaison entre le minimum de la bande de conduction et le sommet de la bande de valence est donc indirect. La différence d'énergie  $h\nu$  entre l'électron dans la bande de conduction et dans la bande de valence est emportée principalement par un photon. Mais il y a également une différence de vecteur d'onde entre les deux états, la quantité de mouvement est apportée par l'absorption d'un phonon du réseau – la recombinaison avec émission d'un phonon est

7. <http://www.nextnano.de/nextnano3/>



**FIGURE IV.18:** Représentation schématique de la bande de conduction et des trois bandes de valence du puits quantique de SiGe utilisé pour l'injection de spins.

également possible. Le mécanisme est présenté au (a) de la figure IV.19 page ci-contre. Dans un matériau donné, il existe plusieurs branches de phonons comme le montrent les relations de dispersion proposées au (a) de la figure IV.20 page suivante. Cette propriété se traduit dans les courbes de luminescence par différents pics ou rebonds associés aux énergies des différentes branches de phonons apportant la quantité de mouvement nécessaire à la recombinaison.

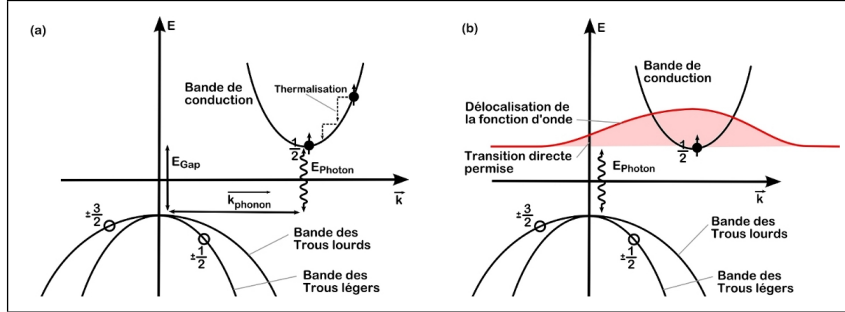
Dans le cas des structures quantiques où les porteurs sont confinés, typiquement dans le puits de SiGe, il existe un mode de recombinaison supplémentaire. Si le gap de l'alliage reste bien un gap indirect, il existe en revanche un mode de recombinaison à zéro phonon. La localisation des porteurs dans l'espace réel implique une délocalisation dans l'espace réciproque. L'extension dans cet espace de la fonction d'onde autorise les transitions directes, la présence de phonons n'est pas indispensable comme le montre la figure IV.19 page ci-contre.

## 3.2 Structures à base de silicium

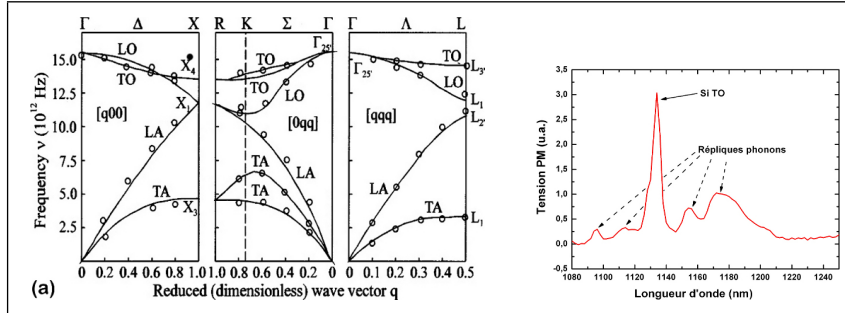
### 3.2.1 Croissance

**a Croissance par dépôt chimique en phase vapeur** Les échantillons à base de silicium et germanium utilisés pour l'étude de l'injection de spins sont déposés par





**FIGURE IV.19:** (a) Représentation schématique de la structure de bandes d'un semi-conducteur à gap indirect. L'énergie issue de la recombinaison électron-trou est principalement emportée par un photon. (b) Lorsque la recombinaison est localisée dans l'espace réel, l'étalement de la fonction d'onde dans l'espace réciproque autorise les recombinaisons directes



**FIGURE IV.20:** (a) D'après [IOFFE, 2010]. Courbes de dispersion des différentes branches de phonons dans le silicium. (b) La courbe montre le spectre de photoluminescence du silicium. Le pic principal est le pic de recombinaison assisté par les phonons transverses optiques. Il est possible de distinguer deux autres pics liés à la recombinaison avec d'autres phonons de chaque côté.

Dépôt Chimique en phase Vapeur – CVD pour *Chemical Vapor Deposition*. Les paramètres de dépôt – température, pression et choix des précurseurs chimiques – sont très variables dans cette technique d'élaboration. Les développements assez récents permettent des épitaxies à basse température – de l'ordre de  $650^{\circ}\text{C}$  – et sous pression réduite. Si les croissances à basse température sont moins rapides, elles permettent en revanche de diminuer l'apparition de lignes de glissement, d'obtenir des profils de dopages plus abruptes et surtout de faire croître des hétérostructures à base de germanium sans diffusion dans le silicium.

La croissance de la structure contenant le puits de SiGe a été réalisée sous pression réduite de 26,6 mbar à partir d'un substrat de silicium (001) faiblement dopé  $p$ . Sur ce substrat, un buffer de 500 nm de Si dopée au bore  $p = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ , puis 50 nm de Si intrinsèque sont épitaxiés avant la couche de SiGe. Le puits de 10 nm de  $\text{Si}_{0,7}\text{Ge}_{0,3}$  est recouvert de 50 nm de silicium intrinsèque puis 50 nm de silicium dopé au phosphore  $n = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . La température de dépôt est d'environ  $650^{\circ}\text{C}$ , les précurseurs gazeux utilisés sont le silane pour les différentes couches de silicium, le dichlorosilane avec du germane dilué pour le puits de SiGe. Les dopants ont été apportés par du diborane pour le bore et de la phosphine pour le phosphore. Les précurseurs gazeux sont dilués dans un flux d'hydrogène de haute pureté de quelques dizaines de litres par minute.

Une fois la structure terminée, elle est protégée par une couche de 2 nm de  $\text{SiO}_2$  par oxydé thermiquement.

### 3.2.2 Les différentes structures utilisées

L'étude de l'injection de spins dans le silicium requiert des structures émettrices de lumière par électroluminescence. La complexité des phénomènes de recombinaison optique dans le silicium et les alliages à base de silicium ne permet pas de prédire a priori si les structures émettrices permettent de discriminer un courant polarisé ou non. Il n'est généralement pas possible de faire un lien quantitatif entre la polarisation du courant injecté et la lumière émise. De nombreuses structures ont donc été testées pour déterminer celles qui donnent des résultats de polarisation de lumière. La difficulté de ce travail réside dans le fait que l'absence de polarisation de la lumière détectée peut être liée soit à l'injection d'un courant non-polarisé, soit à l'émission par la structure d'une lumière non polarisée malgré la polarisation des porteurs qui en sont responsables.

Les structures utilisées se regroupent en deux familles : celle des puits et multi-puits de  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  et celle des multi-plans de boîtes de germanium insérés dans un substrat de silicium. Pour ces deux types de structures, la zone active aurait dû être insérée dans une diode p-i-n de silicium. Des difficultés liées à l'obtention de couches dopées  $n$  n'ont pas toujours permis d'avoir la structure complète. Le profil de dopage sera précisé dans la description des structures. Les tableaux IV.21 page

précédente et IV.22 page précédente résumant et nommant les différentes structures utilisées pour l'injection.

Structure	Multi-puits SiGe						
Nom	SiGe QW	P01	P02	P03	P09	P10	P12
Nombre de puits	1	2	4	8	2	4	8
Taux de Ge	25%	38%			48%		
Epaisseur des puits	10 nm	9 nm séparés par 30 nm de Si nid					
Structure complète	Si nid (50 nm)	Si n = 10 <sup>18</sup> cm <sup>-3</sup> (200nm)					
	Puits SiGe	Si nid (50 nm)					
	Si nid (50 nm)	Multi-puits de SiGe					
	Si p = 10 <sup>19</sup> cm <sup>-3</sup> (500 nm)	Si nid (50 nm)					
	Si p <sup>-</sup> = 10 <sup>15</sup> cm <sup>-3</sup>	Si p = 10 <sup>19</sup> cm <sup>-3</sup> (500 nm)					
Substrat		Si p <sup>-</sup>					

**FIGURE IV.21:** Tableau récapitulatif des différents substrats utilisés pour la détection de spins dans le silicium contenant des puits de silicium-germanium

Structure	Boîtes Ge		
Nom	Ge8939c	A648	A649
Nombre de plans de boîtes	32	4	3
Séparation des plans	75 nm de Si nid	25 nm de Si nid	
Structure complète	Si nid Plans de boîtes Si nid	Si n = $1.5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ (50nm) Si nid (50 nm) Plans de boîtes Si nid (50 nm) Si p = $2.5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ (50 nm) Si	
Substrat			

**FIGURE IV.22:** Tableau récapitulatif des différents substrats utilisés pour la détection de spins dans le silicium contenant des plans de boîtes de germanium

Dans la famille des puits quantiques de  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ , plusieurs modèles ont été utilisés. La première structure à avoir été testée est celle nommée *SiGe QW* dans le tableau IV.21 page précédente. Cette structure a été épitaxiée en dépôt chimique en phase vapeur par J.-M. Hartmann du CEA/LETI. La structure que nous souhaitions obtenir était un puits de  $\text{Si}_{0.7}\text{Ge}_{0.3}$  sur un substrat de silicium dopé *p* et un espaceur de silicium non dopé de 50 nm, puis recouvert d'un espaceur de silicium non dopé de la même épaisseur et d'une couche de 50 nm de silicium dopé  $n = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . L'observation en coupe de la structure par Microscopie Electronique à Transmis-

sion a montré que l'épaisseur au-dessus du puits n'était que de 50 nm. Une mesure de dopage de la couche supérieure n'a pas donné de résultat. Il est donc probable que la couche de silicium dopée  $n$  en surface n'ait pas été épitaxiée, la structure réelle étant celle présentée dans le tableau IV.21 page précédente.

D'autres structures contenant des puits quantiques ont été utilisées pour l'injection Ce sont les multi-puits  $P01, P02, P03, P09, P10, P12$  du tableau IV.21 page précédente. Des séries de  $n$  multi-puits de  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  séparés par 30 nm de silicium intrinsèque ont été épitaxiées. Différentes concentrations de germanium  $x = 38\%$  ou  $48\%$  ont été utilisées pour des empilements de  $n = 2, 4$  ou  $8$ . La zone active est insérée dans une diode de silicium.

L'utilisation de boîtes de germanium comme détecteur a aussi été envisagée. Le premier substrat utilisé a été fourni par Pierre Noé du laboratoire Sinaps où sont effectuées les mesures d'électroluminescence. La nature de l'empilement qui n'a pas été conçu pour effectuer des mesures d'injection de spins est présenté sous le nom *Ge8939c* dans le tableau IV.22 page précédente. Il s'agit d'un empilement de 32 plans de boîtes de germanium séparés par 75 nm de silicium. Le nombre et la dispersion en taille des boîtes – voir la section 3.2.3 – ainsi que l'absence de profil de dopage adapté n'a pas fait de cette structure un bon candidat pour cette étude.

Enfin, l'injection a été étudiée dans des boîtes de germanium insérées dans une diode de silicium spécialement épitaxiée pour cette problématique par D. Bouchier de l'Institut d'Electronique Fondamentale à Orsay. Deux structures, *A648* et *A649* (voir tableau IV.22 page précédente) comprenant respectivement trois et quatre plans de boîtes séparés par 25 nm de silicium non dopé insérés dans la zone intrinsèque d'une diode  $p-i-n$  de silicium ont été utilisées.

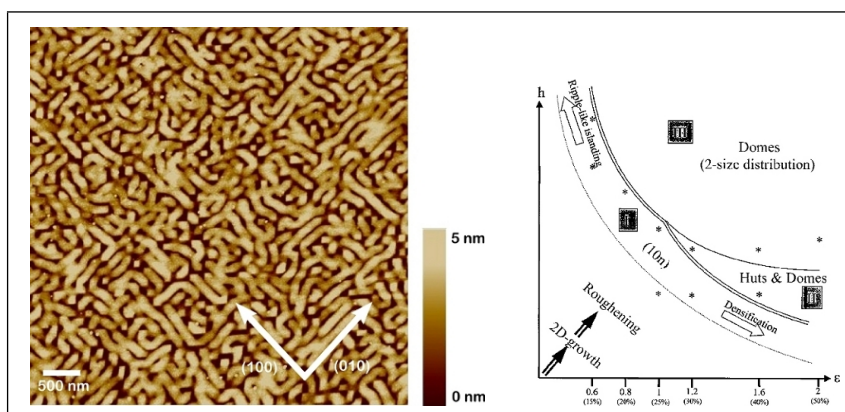
### 3.2.3 Caractérisation des différentes structures utilisées

**a Microscopie AFM et TEM** La technique la plus simple à mettre en œuvre pour caractériser les structures de détection est d'observer leur surface par Microscopie à Force Atomique.

**Puits de SiGe** L'observation de la surface des échantillons par microscopie à force atomique a permis de montrer une rugosité de surface régulière, de l'ordre de quelques nanomètres. Cette rugosité montrée sur les images IV.23 possède deux directions privilégiées  $[100]$  et  $[010]$ <sup>8</sup>, elle est caractéristique des croissances en îlots de germanium sur silicium.

Berbezier *et al.* ont étudié en détail la croissance de  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  sur Si (001), montrant les modes de croissance en fonction du taux  $x$  de Ge et de l'épaisseur  $h$

8. Ces orientations sont à  $45^\circ$  de la direction de clivage du silicium, le long des direction  $[110]$

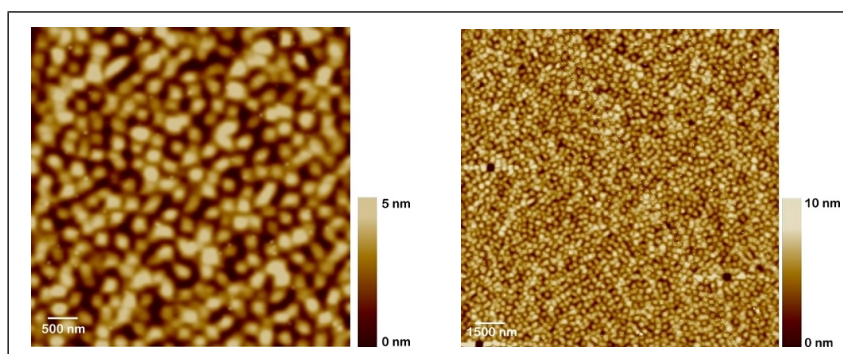


**FIGURE IV.23:** (a) Image par Microscopie à Force Atomique de la surface de l'échantillon contenant le puits de  $\text{Si}_{0.7}\text{Ge}_{0.3}$ . (b) D'après [Volpi, 2000]. Diagramme de phase du mode de croissance de SiGe sur Si, en fonction de l'épaisseur de SiGe et de la différence de paramètre de maille avec le silicium.

de l'alliage [Berbezier, 1998] [Volpi, 2000]. De cette étude est tiré le diagramme de phase présenté figure IV.23. Pour  $x = 30\%$ , la différence de paramètre de maille entre le silicium et l'alliage vaut  $1,2\%$ . Dans ce cas, le puits de SiGe présente des édifices pyramidaux appelés *huts*, alignés le long des direction  $[100]$  et dont les facettes correspondent aux plans  $(105)$ . Ronda *et al.* [Ronda, 2000] ont prouvé par des mesures de diffraction X l'absence de relaxation plastiques dans ces *huts*. Les observations sur nos structures permettent de retrouver les résultats de Berbezier *et al.*, à savoir une structuration tridimensionnelle avec une rugosité de l'ordre de  $3 \text{ nm}$  pour des motifs d'environ  $100 \text{ nm}$ .

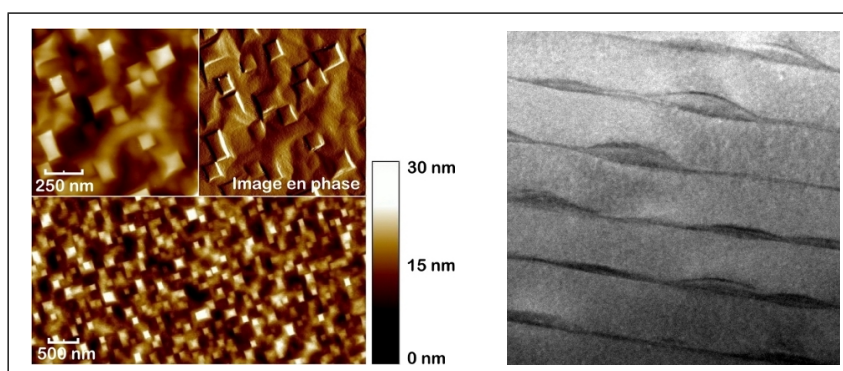
**Boîtes de germanium** L'observation de la surface d'un échantillon pour étudier la croissance des boîtes de germanium est sans doute peu pertinente car les structures contiennent quatre plans de boîtes, la forme et la taille des boîtes est faussée par cette superposition. La croissance de boîtes de germanium sur silicium suit un mode de croissance de type *Stranski-Krastanov*. La différence de paramètre de maille d'environ  $4 \%$  entre les deux matériaux entraîne une croissance couche par couche du germanium contraint sur trois monocouches [Mo, 1990], puis l'énergie de contrainte devient trop importante et la croissance devient tridimensionnelle. On obtient alors des boîtes quantiques.

Les boîtes de germanium  $\text{Ge}_{89}\text{Si}_{91}$  utilisées pour les premiers tests d'injection de spin ont été observées en Microscopie Electronique à Transmission par P. Bayle-Guillemaud. Les images obtenues permettent de déterminer la taille des boîtes, mais montrent surtout une forte dispersion en taille expliquant la largeur des



**FIGURE IV.24:** Images AFM de la surface du substrat A648 contenant les boîtes de germanium. Ces images ne semblent pas montrer d'anisotropie dans la forme et la taille des boîtes – environ 200 nm en moyenne. (a) Image  $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ . (b) Image  $15 \times 15 \mu\text{m}^2$ .

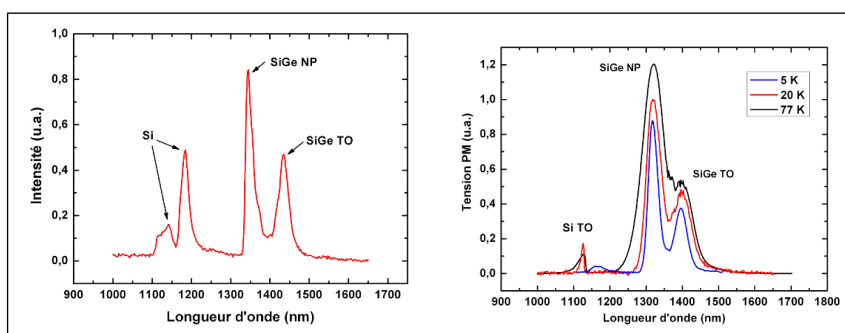
spectres d'électroluminescence obtenus avec ces objets. La surface de ce substrat imagé en AFM est également présentée figure IV.25.



**FIGURE IV.25:** (a) Image AFM  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$  et  $5 \times 5 \mu\text{m}^2$  de la surface du substrat Ge8939c contenant les boîtes de germanium. (b) Coupe TEM de 7 des 32 plans de boîtes de germanium.

**b Mesures d'électroluminescence et photoluminescence** Avant de faire des mesures d'injection de courant polarisé dans les différentes structures semi-conductrices, des mesures de photoluminescence et électroluminescence ont été réalisées afin de les caractériser. Les différents pics de luminescence obtenus ont été identifiés par comparaison aux spectres trouvés dans la littérature.

**Puits de SiGe** Le puits de SiGe appelé *SiGe QW* a été observé aussi bien en photoluminescence qu'en électroluminescence. Les courbes de luminescence de référence de cette structure sont présentées figure IV.26. La photoluminescence a été réalisée sans électrode supérieure, l'électroluminescence à l'aide d'une électrode  $Ti_{5\text{ nm}}/Au_{100\text{ nm}}$  déposée par pulvérisation cathodique après désoxydation de la surface du silicium. La référence de la luminescence de certains des multi-puits *P01* à *P12* est présentée figure IV.27 page suivante



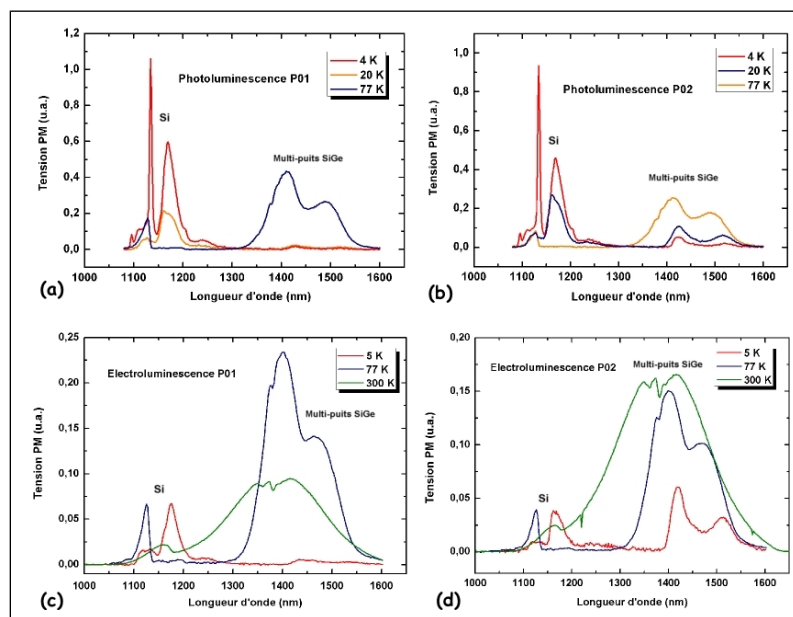
**FIGURE IV.26:** Courbes de référence de la luminescence du puits de SiGe. (a) SiGe QW excité en photoluminescence à 4 K. (b) SiGe QW excité en électroluminescence à différentes températures. Les intensités sont arbitraires et les courbes ont été décalées pour obtenir une meilleure lisibilité.

**Boîtes de germanium** Il n'y a que peu de courbes de référence pour les substrats contenant des boîtes de germanium. Aucune des structures *Ge8939c*, *A648* ou *A649* n'a été observée en photoluminescence et seules des courbes de référence pour l'électroluminescence des plans de boîtes *Ge8939c*, présentées figure IV.28 page 155, ont été réalisées.

### 3.3 Détection et polarisation du courant injecté

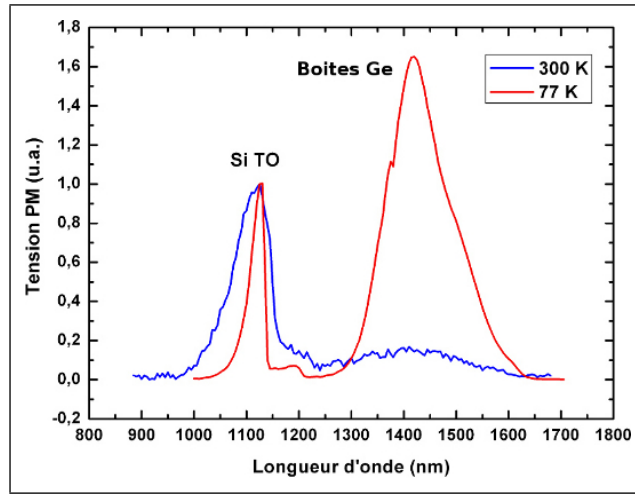
#### 3.3.1 Mesures d'électroluminescence

**a Electroluminescence et exploitation** Détecter la polarisation en spin du courant injecté dans le silicium revient donc à faire circuler un courant dans l'échantillon et à détecter la polarisation optique du spectre de luminescence qui lui est liée. Pour une température donnée, nous avons enregistré quatre spectres de luminescence pour chaque plot étudié d'un échantillon. Deux suivant deux positions à  $90^\circ$  de la lame quart d'onde lorsque l'aimantation de la couche magnétique est saturée par le pôle Nord d'un aimant permanent et deux suivant les mêmes positions



**FIGURE IV.27:** Courbes de références de la luminescence des multi-puits de SiGe à différentes températures. P01 excité en photoluminescence (a) et électroluminescence (c). P02 excité en photoluminescence (b) et électroluminescence (d). Ces courbes de références permettent de choisir les meilleurs candidats pour l'étude de l'injection de spins. Les intensités sont arbitraires et les courbes ont été décalées pour obtenir une meilleure lisibilité.





**FIGURE IV.28:** Courbes de référence de l'électroluminescence de l'échantillon Ge8939c. Les intensités sont normalisées à 1 pour le pic principal du silicium.

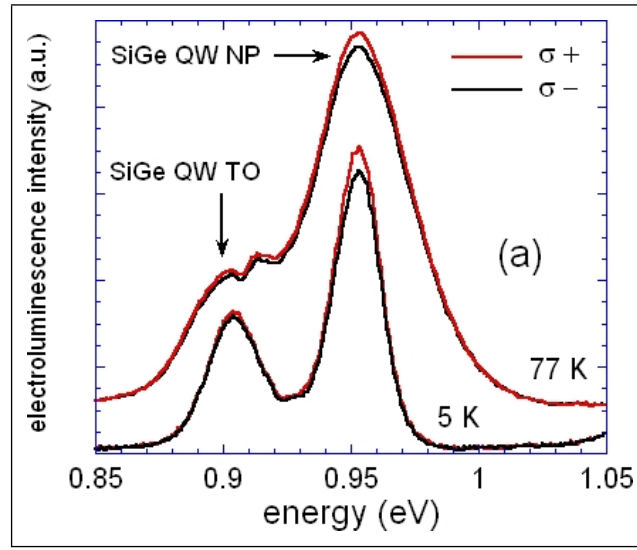
de la lame quart d'onde lorsque l'aimantation de la couche magnétique est saturée par le pôle Sud de l'aimant. Les deux positions de la lame quart d'onde analysent respectivement les polarisations  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  de la lumière émise par l'échantillon. Les spectres obtenus pour une orientation de l'aimantation de la couche magnétique sont donnés Figure IV.29 page suivante.

A partir de ces spectres, il est possible de donner la polarisation de la lumière optique produite par l'échantillon. La définition de la polarisation optique est donnée par :

$$P_{opt} = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}} \quad (IV.31)$$

où  $I_{\sigma^+}$  et  $I_{\sigma^-}$  sont les intensités lumineuses mesurées pour chacune des positions de la lame quart d'onde. La polarisation optique ne pouvant être reliée directement à la polarisation en spin du courant, la détermination de sa valeur exacte n'est pas primordiale. Par commodité, nous avons donc décidé de choisir comme valeur de polarisation celle donnée par la différence des intensités au maximum des pics de luminescence et non une valeur intégrale sur l'ensemble des pics. Pour déterminer ce maximum, les sommets des pics sont ajustés par des paraboles afin de limiter le bruit de mesure sur le seul point de plus forte intensité.

Si la seule source de polarisation provenait de l'orientation des spins lorsqu'ils se recombinent, la polarisation observée pour les deux états d'aimantation serait égale en valeur absolue et opposée en signe. Ce n'est pas ce qui est observé et une polarisation linéaire supplémentaire est présente, sans doute due à l'émission du puits quantique ou à des réflexions dans le montage optique – son origine n'est



**FIGURE IV.29:** D'après [Grenet, 2009]. Spectre d'électroluminescence du puits SiGe QW analysé suivant les polarisations  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  pour une direction d'aimantation donnée.

pas évidente à déterminer dans la mesure ou son importance varie selon les échantillons. La polarisation optique due à l'injection de spin est alors définie comme la moyenne des polarisations mesurées pour chacune des orientations Nord et Sud de l'aimantation de la couche magnétique :  $\mathcal{P}_{opt} = \frac{\mathcal{P}_{opt}^N - \mathcal{P}_{opt}^S}{2}$ .

En utilisant ces définitions de la polarisation nous avons pu mesurer une polarisation maximale de 3% sur le pic à zéro phonon du puits de SiGe et de 1,5% sur le pic associé à la recombinaison assistée par les phonons transverses optiques.

**b Efficacité d'injection** Détecter la polarisation optique de la lumière émise par électroluminescence d'un courant polarisé injecté dans une structure semi-conductrice n'est pas une fin en soit. Le but est de déterminer l'efficacité de l'injection de spins depuis l'électrode ferromagnétique. Dans les semi-conducteurs à gap direct, il est facile d'estimer cette efficacité puisque le rapport entre polarisation optique de la lumière et polarisation en spin du courant est simplement :  $\mathcal{P}_{spin} = \mathcal{P}_{opt}$  (voir b).

Dans les détecteurs à base de silicium, le problème est beaucoup plus complexe, en particulier avec les structures pour lesquelles les phénomènes de recombinaison optique sont assistés par des phonons. Premièrement les règles de sélection dipolaires ne sont pas connues et il est possible qu'une partie du moment de spin des électrons soit emporté par les phonons. De plus les temps de recombinaison sont longs, parfois supérieurs aux temps de vie de spin escomptés. Une partie

de la population de spin peut donc se dépolariiser entre l'injection et la détection. Jonker *et al.* ont corrigé leur efficacité d'injection dans une diode de silicium en utilisant cet argument [Jonker, 2007]. Ils lient la polarisation du courant à celle de la lumière détectée par :

$$\mathcal{P}_{spin} = \mathcal{P}_{opt} \left(1 + \frac{\tau_r}{\tau_{sf}}\right) \quad (\text{IV.32})$$

où  $\tau_r$  et  $\tau_{sf}$  sont les temps de recombinaison et temps de vie de spin estimés dans le SiGe. Grâce à ce facteur correctif, ils annoncent  $\mathcal{P}_{spin} \approx 30\%$  avec une valeur de polarisation optique  $\mathcal{P}_{opt} = 3\%$ .

Dans notre système, la recombinaison se fait sans assistance de phonons et les temps de vie radiatifs sont plus court mais les temps de vie de spin probablement aussi à cause du germanium. Il doit donc y avoir un même facteur correctif mais que nous n'avons pu appliquer sans preuve expérimentale. Nous ne pouvons donc pas annoncer une efficacité réelle d'injection de spins dans le silicium depuis une électrode de cobalt-platine.

**c Exclusion des artefacts de mesure** Affirmer que la polarisation circulaire de la lumière détectée provient de l'aimantation de la couche magnétique est sujet à caution d'autant plus qu'il n'y a pas de preuve théorique que les règles de sélection dipolaire dans le SiGe permettent cette observation. Plusieurs expériences ont alors été menées pour exclure les éventuels artefacts de mesure.

La première précaution a été de s'assurer qu'il n'y a aucune polarisation circulaire de la lumière lorsque la couche magnétique est remplacée par une couche non magnétique. Des tests réalisés avec une électrode de titane-or ont permis de montrer que c'était le cas. Nous avons aussi vérifié qu'aucune polarisation n'était détectée lorsque la couche magnétique avait été préalablement désaimantée.

L'absence de champ magnétique appliqué sur l'échantillon lors des mesures optiques permet à priori d'exclure l'effet Faraday et le dichroïsme magnétique circulaire – *MCD* – dans les 50 nanomètres de la couche supérieure de silicium qui aurait pu être responsable de la polarisation de la lumière. Pour s'assurer que l'effet Faraday dans la couche de cobalt-platine n'était pas responsable d'un tel effet nous avons fait croître un injecteur  $Al_2O_3/Co/Pt$  sur une lame de silicium polie double face que nous avons insérée dans le trajet optique de la lumière émise par le puits de SiGe avec une électrode de Titane-Or. Aucune polarisation n'a été observée dans ce cas.

L'ensemble de ces mesures complémentaires nous ont permis d'affirmer que la polarisation de la lumière était bien le fruit de l'injection de courant polarisé en spin dans le silicium. Il aurait été intéressant de rajouter une mesure de photoluminescence réalisée à travers la couche de CoPt mais les bancs d'optique utilisés ne permettaient pas de combiner photoluminescence et analyse en polarisation.

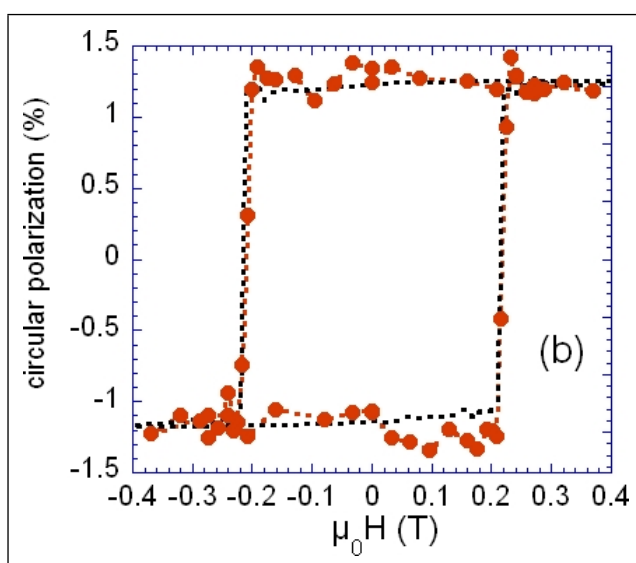
**d Mesures complémentaires** Le fait que la polarisation de la lumière émise par le puits de SiGe dépende de l'état de l'aimantation de la couche de CoPt servant à injecter le courant nous a donné l'idée de mesurer un cycle d'hystérésis de cette couche grâce à la polarisation de la lumière. Le cryostat utilisé ne possédant pas de bobine supraconductrice adaptée pour les études en fonction d'un champ magnétique, nous avons fabriqué une bobine fixée devant celui-ci. Après avoir étalonné grâce à une sonde de Hall le champ magnétique appliqué dans le cryostat en fonction du courant dans la bobine, l'expérience a été réalisée de la manière suivante :

- Le champ magnétique maximal est appliqué via la bobine sur l'échantillon puis coupé. Le photomultiplicateur est réglé au maximum du pic à zéro phonon du puits de SiGe. Le signal reçu pour chacune des deux orientations de la lame quart d'onde est collecté pendant une dizaine de seconde pour augmenter le rapport signal sur bruit puis la polarisation est ensuite calculée simplement comme définie par l'équation IV.31 page 155. Il est important de noter que le champ magnétique associé à chaque point de polarisation n'est pas appliqué pendant la mesure optique mais que c'est le champ maximal appliqué sur l'échantillon avant la mesure. Ainsi, certaines valeurs de champ sont inutiles – lorsque la valeur absolue du champ magnétique diminue – mais elles permettent une meilleure visualisation du cycle et également de vérifier que le signal de polarisation de la lumière ne varie pas trop. Après avoir *recentré* le signal de polarisation, c'est à dire avoir enlevé l'offset lié à la polarisation linéaire, on obtient la figure IV.30 page ci-contre.

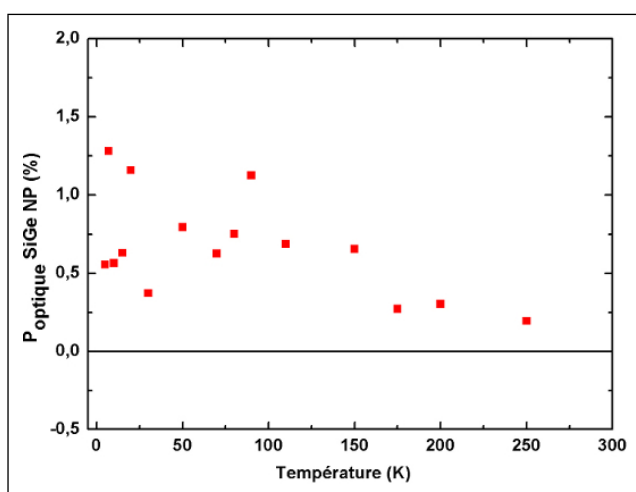
**e Etude en température** En novembre 2009, Dash *et al.* parviennent à montrer la création d'un courant polarisé en spin dans le silicium à température ambiante [Dash, 2009]. La maîtrise de l'injection de courant polarisé en spin dans le silicium à température ambiante est évidemment souhaitée pour de potentielles applications.

La structure *SiGe QW* permettant de réaliser des spectres d'électroluminescence jusqu'à des températures relativement élevées, il était naturel de chercher à déterminer l'influence de la température sur la polarisation de la lumière émise. Pour chaque température, la mesure de la polarisation de la lumière s'est faite de la manière suivante : les deux spectres de luminescence suivant  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  ont été enregistrés pour les deux directions d'aimantation de la couche magnétique, puis les quatre spectres ont été ajustés en leur sommet par une parabole. Ensuite la polarisation retenue est la moyenne des polarisations optiques mesurées au sommet des pics pour chacune des directions d'aimantation afin de ne pas être affecté par l'éventuelle polarisation linéaire supplémentaire. Cette méthode d'ajustement des pics a été utilisée pour limiter le bruit qui peut être important en prenant juste le point de luminescence maximum. Le résultat de cette étude est présenté figure IV.31.

Cette mesure ne permet pas de conclure sur une éventuelle forme de la dépendance de la polarisation lumineuse en fonction de la température. Le bruit est trop



**FIGURE IV.30:** D'après [Grenet, 2009]. Mesure du cycle d'hystérésis de la couche de CoPt à l'aide de la polarisation de la lumière émise par le puits de SiGe. Les points rouges correspondent à la polarisation de la lumière émise par la structure après application puis extinction d'un champ magnétique. Superposé en pointillés noirs le cycle d'hystérésis de cette même couche mesurée par magnétométrie SQUID à la même température de 77K.



**FIGURE IV.31:** Polarisation de la lumière émise par le pic à 0 phonon de SiGe QW en fonction de la température

important et il conviendrait de répéter l'expérience plusieurs fois afin de pouvoir déterminer une valeur moyenne plus précise et les barres d'incertitude liées. Cette mesure prévue en fin de thèse n'a pas pu être réalisée faute de temps.

Il est en revanche notable que la polarisation de la lumière subsiste jusqu'à une température de l'ordre de 250 K et l'absence de points au delà de cette température vient de l'élargissement trop important du pic de luminescence du SiGe, ne permettant pas d'analyser la lumière en polarisation.

### 3.3.2 Mesures sur les autres structures

Sur toutes les structures utilisées pour étudier l'injection de courant polarisé en spin dans les semi-conducteurs, seuls les puits de SiGe – appelés *SiGe QW*, voir le tableau IV.21 page 149 – ont montré des résultats de polarisation par électroluminescence<sup>9</sup>. Il n'est pas possible d'affirmer de façon certaine que cette observation est le seul fait des structures semi-conductrices. Les problèmes de reproductibilité des mesures peuvent également être mis en cause.

Il y a trois types d'explications possibles pour l'absence de polarisation de la lumière émise par les multi-puits de SiGe ou par les boîtes de germanium. Il est possible que la croissance des injecteurs sur ces structures se soient toutes mal passées. Pour exclure cette hypothèse, il aurait fallu réaliser les croissances conjointement sur un échantillon de *SiGe QW* et sur les autres structures – dépôt simultané sur le même porte échantillon, recuit en même temps –, et observer une polarisation avec les substrats *SiGe QW* et pas avec les autres. Cette observation aurait nécessité un grand facteur chance dont nous n'avons pas bénéficié.

La deuxième hypothèse peut être liée au semi-conducteur. Le courant peut être injecté avec un taux de polarisation en spin conséquent dans les structures comprenant multi-puits ou boîtes de Ge mais il se dépolarise avant de pouvoir être détecté à cause des épaisseurs de silicium à traverser ou du dopage de ce dernier. Pour vérifier cette hypothèse, il faudrait modifier ces structures pour avoir exactement les mêmes couches supérieures que dans *SiGe QW*. Au vu des faibles épaisseurs de silicium mises en jeu et de la similarité entre les couches supérieures des différentes structures, ainsi que des longueurs de cohérence de spin prédites théoriquement dans le silicium, cette supposition reste peu vraisemblable.

La dernière éventualité concerne les structures mêmes, puisqu'il n'est pas possible que la détection de courant polarisé en spin soit réalisable dans ces dispositifs. Si le

---

9. Malgré les efforts consentis pour augmenter le rapport signal sur bruit et accéder à des taux de polarisation les plus faibles possibles, grâce entre autre à un modulateur photo-élastique, le manque de stabilité dans les conditions de mesures dû entre autre au faible rendement de luminescence du silicium n'ont pas permis de mesurer des taux de polarisation inférieurs à quelques dixièmes de pourcent. Il est donc possible d'avoir manqué des observations d'injection de spins dans certaines structures.

rapport entre polarisation de la lumière émise par une spin-LED et celle du courant la traversant est connu dans les semi-conducteurs à gap direct (voir b page 126), ce n'est pas le cas dans celles à base de silicium et à plus forte raison dans les structures complexes comme les multi-puits ou les multi-plans de boîtes. Les contraintes liées à l'épitaxie des différentes couches entraînent une modification supplémentaire de la structure de bandes de ces matériaux. Connaître les règles de sélection dipolaires dans ces matériaux nécessite donc un travail théorique poussé, faisant sans doute appel à d'importants moyens de simulation et sortant du cadre de cette thèse. L'hypothèse que certaines structures ne peuvent pas donner de résultats à cause de leurs règles de sélection dipolaire n'est donc pas écartée.

Les dernières tentatives d'électroluminescence sur les plans de boîtes A648 et A649 fournies par l'I.E.F. n'ont pas donné de résultats satisfaisants – pas de luminescence ou pics trop larges. L'étude n'a donc finalement pas été menée sur ces structures.

### 3.3.3 Reproductibilité des mesures

Le système étudié pour l'injection de spin dans le silicium est simple. La croissance par pulvérisation cathodique d' $Al_2O_3/Co/Pt$  sur un substrat désoxydé de silicium ne pose pas de réel problème de croissance. Le peu de résultats obtenus sur ces structures pose le problème de la reproductibilité de ces échantillons. En effet de très nombreux échantillons ont été élaborés en vue de cette étude et seule une petite fraction des échantillons a donné des résultats exploitables, c'est à dire montrant des polarisations optiques accessibles à la mesure.

Les pistes pour expliquer ce manque de reproductibilité sont faibles, les différences entre les échantillons qui donnent des résultats et ceux ne montrant pas de polarisation sont minimales. Les différences observées pour trouver une explication sont les suivantes :

D'un point de vue temporel, des résultats ont été obtenus assez rapidement et sur deux périodes. Pendant environ trois mois après le début des expériences sur *SiGe QW*, pratiquement tous les échantillons donnaient de la polarisation. Après une pause de quelques mois, de nouvelles tentatives sont restées infructueuses pendant environ six mois. Puis récemment – durant le mois de janvier 2010 – de nouveaux résultats de polarisation sont apparus après avoir fait le dépôt de l'injecteur intégralement in-situ. Cette observation exclut l'hypothèse d'une détérioration du détecteur dans le temps.

Il semble donc que la non-reproductibilité des mesures soit le fait de l'injecteur, mais la cause n'est pas évidente pour autant. L'injecteur joue deux rôles distincts, celui de polariser en spin le courant qui le traverse – rôle de la couche magnétique – et celui de barrière tunnel. L'absence de polarisation peut donc être due soit au

fait que le courant injecté n'est pas polarisé, soit au fait que le courant se dépolarise lors de l'injection à cause du problème de *conductivity mismatch* lié à une barrière tunnel défectueuse.

La recette utilisée pour faire croître l'injecteur a toujours été identique, les seuls paramètres pouvant varier de manière aléatoire étant le vide dans le bâti de pulvérisation avant le dépôt ainsi que le vide dans le four de recuit. Ces constatations ne semblent pas pencher pour l'hypothèse d'une variation selon les échantillons de la polarisation de la couche magnétique. Cependant, nous avons observé que les cycles d'hystérésis ont varié dans le temps. Les injecteurs de la première série d'échantillons présentant de la polarisation avaient une couche magnétique à aimantation perpendiculaire dont le champ coercitif se situait aux alentours de 0,15 Tesla à température ambiante. Sans que l'on parvienne à l'expliquer, le champ coercitif des échantillons a augmenté pour atteindre une valeur de 0,3 à 0,4 Tesla. Parallèlement les résultats de polarisation ont disparu. Les derniers échantillons présentant un signal de polarisation n'ont pas été conçus de la même manière mais ils présentent également un champ coercitif assez faible. Il n'y a pas de lien direct et évident entre la polarisation en spin au niveau de Fermi d'un métal ferromagnétique et la valeur de son champ coercitif. Cependant, la polarisation du courant injecté depuis l'électrode dépend intimement de l'interface métal-barrière tunnel. Il se trouve que le champ coercitif de l'électrode dépend entre autre de l'anisotropie de la couche magnétique qui elle-même est principalement pilotée par l'interface cobalt-Alumine. Ces deux phénomènes ne sont donc pas directement liés mais possèdent la même origine, à savoir l'interface entre la barrière isolante et la couche ferromagnétique. Il aurait sans doute été possible de sonder les états d'interface par XPS – *X-Ray Photoemission Spectrometry* – pour connaître par exemple l'influence de l'oxydation du cobalt sur ces propriétés.

L'autre hypothèse envisagée est liée au régime de transport à travers la barrière tunnel suivant les échantillons, la perte de la polarisation étant due à des barrières court-circuitées. On ne peut pas exclure un changement de la qualité de l'alumine déposée, même si cela semble peu probable. En revanche tous les échantillons ont été élaborés à partir de la même plaque de silicium. Cependant la structure de diode du substrat de silicium et le contact non-parfait en face arrière apportent aussi des non linéarités dans la caractéristique courant-tension et il est impossible par cette simple mesure de valider un transport tunnel ou non. De plus l'alimentation de courant utilisée pour les premières expériences ne permettait pas d'obtenir ces caractéristiques. Pour prévenir la dépolarisation à l'interface, une attention très particulière a été donnée au nettoyage des échantillons avant dépôt d'alumine afin d'éliminer un maximum d'impuretés. Conjointement cobalt et platine ont été déposés dans le même bâti que l'alumine pour ne pas polluer la surface en la remettant à l'air entre les deux dépôts. Ces deux précautions se sont accompagnées de l'obtention de nouveaux résultats sans que l'on puisse en connaître l'origine exacte, d'autant plus que les couches déposées in-situ présentent également un champ coercitif



faible, ce qui ne permet pas non plus d'exclure la première hypothèse sur l'origine de la non-reproductibilité des échantillons.

## 4 Conclusion

Ce chapitre a traité de la détection des spins injectés depuis une électrode ferromagnétique vers les semi-conducteurs. Deux matériaux semi-conducteurs sont évoqués, l'arséniure de gallium et le silicium. Si l'idée de détecter optiquement un courant polarisé dans une structure quantique à base de GaAs semblait la plus facile à réaliser tant l'optique et l'électroluminescence dans ces matériaux a connu de forts développements. Cependant les structures de puits quantique utilisées n'ont jamais donné de signal d'électroluminescence pour des raisons qui n'ont pas été bien comprises. L'injection de spins dans le GaAs n'a pu être démontrée.

La détection optique de spin dans le silicium semblait plus complexe à réaliser à cause des faibles rendements d'électroluminescence dans les semi-conducteurs à gap indirect. Mais elle a pu être démontrée grâce à la détection optique via un puits quantique de silicium-germanium. La polarisation de la lumière émise par ce puits est de l'ordre de 3 % ce qui est au niveau de l'état de l'art. Un article a été publié sur ce travail.

D'autres structures à base de silicium et germanium ont été testées pour détecter optiquement le courant polarisé en spin injecté dans le silicium depuis l'électrode de CoPt mais sans succès. A l'heure où je conclus ce manuscrit, l'étude de la polarisation du courant en fonction de la température est en cours.



# Conclusion

Les résultats obtenus au cours de ce travail de thèse sont résumés dans les quelques lignes qui suivent. Ils s'articulent autour de plusieurs axes et concernent autant le magnétisme que le transport polarisé en spin.

Le premier succès de ce travail concerne l'épitaxie de structures pour l'injection de spins dans l'Arséniure de Gallium. Nous avons réussi la reprise épitaxiale du MgO puis FePt dans la structure  $L1_0$  sur du GaAs. Cet injecteur possède de bonnes qualités structurales et des propriétés magnétiques satisfaisantes pour pouvoir l'utiliser pour l'injection et la détection optique de courant polarisé dans les matériaux semi-conducteurs. La qualité cristallographique d'une barrière tunnel épitaxiée laisse présager des propriétés intéressantes de filtrage en spin mais les structures n'ont pu être utilisées pour cette étude à cause de défauts du détecteur. Le courant injecté n'a pu être détecté.

Après seize mois de tentatives infructueuses pour valider l'injection de courant polarisé en spin dans l'Arséniure de Gallium, l'axe de recherche de cette thèse a été réorienté vers l'injection de spin dans le silicium. La première étape a été de concevoir un injecteur pour ce nouveau matériau.

Cette étape a été couronnée de succès avec l'empilement  $Al_2O_3/Co/Pt$  recuit, qui exhibe une aimantation perpendiculaire 100% rémanente. Il a également été montré que la barrière d'Alumine jouait bien le rôle de barrière tunnel sur des surfaces suffisamment étendues – de taille caractéristique supérieure à  $500\ \mu m$ . Si cet injecteur ne possède à priori pas les qualités de filtrage en spin d'un empilement épitaxié, il est en revanche facile à mettre en place et adapté pour l'industrie en vue d'éventuelles applications. Cet injecteur a permis d'étudier l'injection de courant polarisé en spin dans la silicium.

De nombreuses structures permettant la détection optique de spins ont été testées, des résultats ont seulement été obtenu grâce à un puits de  $Si_{0,7}Ge_{0,3}$ . L'analyse de la polarisation de la lumière émise par ce puits excité en électroluminescence a permis de démontrer l'injection de spins dans le silicium. La polarisation de la lumière, de l'ordre de 3%, est étroitement liée à l'état magnétique de la couche de Cobalt-Platine et s'observe principalement sur le pic de luminescence à zéro

phonon. La dépendance en température de la polarisation de la lumière et donc du courant injecté est en cours d'étude à l'heure de terminer ce manuscrit.

Parallèlement à ce résultat lié à son utilisation comme injecteur, une étude plus approfondie de la structure  $Al_2O_3/Co/Pt$  a également montré des propriétés magnétiques particulières et intéressantes. En variant seulement la température de recuit de cette couche, il est possible de faire varier considérablement son comportement et passer d'une couche à aimantation planaire à une couche à aimantation perpendiculaire avec un champ coercitif nul puis d'augmenter progressivement ce champ coercitif jusqu'à des valeurs de 0,8 tesla. Un film magnétique avec de telles propriétés aussi facilement modulables est évidemment très prometteur pour d'autres applications. L'étude de cette couche, tant au niveau de la structure que de ses propriétés magnétiques et de transport, en particulier pour réaliser des jonctions tunnels magnétiques, est encore en cours au moment de conclure ce manuscrit.

Les perspectives liées à ce travail sont nombreuses et cette étude est loin d'être terminée. A court terme, il aurait été intéressant de mener certaines expériences que je n'ai pas pu réaliser par manque de temps ou de moyens. J'aurais aimé pouvoir *inverser* les injecteurs liés aux deux matériaux semi-conducteurs, à savoir tester l'injection de spins dans l'Arséniure de Gallium depuis une électrode de Cobalt-Platine déposée par pulvérisation cathodique et réciproquement utiliser l'épitaxie du Mgo-FePt sur silicium pour créer un injecteur sur ce matériau. Le but de cet échange aurait été d'utiliser la probable qualité de l'injecteur épitaxié pour obtenir de meilleurs taux d'injection de spin dans le silicium. L'intérêt d'utiliser l'électrode de CoPt en combinaison avec le GaAs est moins évident, mais le rapport unitaire entre la polarisation du courant injecté et la polarisation de la lumière émise dans les semi-conducteurs à gap direct aurait été une bonne indication de l'efficacité de l'injection depuis les électrodes crues par pulvérisation cathodiques. Je n'ai pas pu réaliser cette *inversion* car je ne possédais pas les substrats de GaAs adéquats et la salle du bâti d'épitaxie métaux ne permet pas de préparation chimique assez poussée nécessaire à la reprise épitaxiale sur silicium.

Sans chercher à se focaliser sur les applications concrètes de l'injection de spins depuis une électrode ferromagnétique vers les matériaux semi-conducteurs, il est possible d'articuler en deux parties les évolutions à apporter à cette étude. D'une part, les progrès à accomplir en ce qui concerne la détection optique de spins sont encore nombreux. D'un point de vue théorique, il serait intéressant de savoir évaluer les efficacités de détection optique de courant polarisé dans différentes structures quantiques à base de silicium. Ce travail nécessite probablement de gros moyens de simulation numérique. Le but étant de pouvoir optimiser le détecteur et de choisir celui dont le rapport d'électroluminescence  $\frac{P_{opt}}{P_{spin}}$  est le plus proche de l'unité. L'optimisation du détecteur est également souhaitée pour pouvoir trouver un détecteur émettant un signal d'électroluminescence à température ambiante et explorer l'injection de spins sur toute la gamme des températures. Mais l'étude la plus intéressante à mener avec ce système serait la manipulation des spins

avant leur détection. Dans la géométrie déjà utilisée, cette manipulation pourrait se faire à l'aide d'un champ magnétique, mais en faisant varier la géométrie et en utilisant un canal de conduction légèrement différent – probablement du silicium-Germanium pour bénéficier du couplage spin-orbite dans ce matériau –, il serait plus intéressant de travailler sur la manipulation de spins par un champ électrique via l'effet Rashba.

Enfin, un des buts à terme de cette étude est de savoir réaliser le transistor de Datta et Das [Datta, 1990]. Il reste encore beaucoup à accomplir pour arriver à cette fin, mais les différentes étapes sont envisageables à relativement court terme. Le clef de ce projet est de savoir injecter et détecter électriquement de spins dans un canal semi-conducteur. La première partie est déjà démontrée, il faut s'atteler à la détection électrique de courant polarisé. Une première étape consisterait à travailler en géométrie non-locale (voir la partie 2.3.1 page 12), car cette géométrie lève les difficultés liées à l'adaptation des résistances de barrière. Passer de ce stade au transistor à spin nécessiterait ensuite un gros travail sur les matériaux pour trouver une barrière tunnel répondant à la *fenêtre de résistivité* proposée par Fert *et al.* (voir le paragraphe b page 106) nécessaire pour permettre à la fois l'injection de courant polarisé et sa détection. En réussissant à combiner ce travail avec la manipulation de spin par un champ électrique dans un canal semi-conducteur, il serait possible de réaliser le transistor de Datta et Das, objectif avoué de la spintronique semi-conducteur à l'heure actuelle.



# Bibliographie

- [Alvarado, 1992] ALVARADO, S. et RENAUD, P. (1992). Observation of spin-polarized-electron tunneling from a ferromagnet into GaAs. *Physical Review Letters*, 68:1387 – 1390.
- [Appelbaum, 2007] APPELBAUM, I., HUANG, B. et MONSMA, D. (2007). Electronic measurement and control of spin transport in silicon. *Nature*, 447:295.
- [Attane, 2003] ATTANE, J.-P. (2003). *Interactions entre parois magnétiques et défauts structuraux, et mise en ordre chimique par irradiation, observées dans des couches minces d'alliages FePt(Pd)*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier.
- [Baibich, 1988] BAIBICH, M. N., BROTO, J. M., FERT, A., VAN DAU, F. N., PETROFF, F., ETIENNE, P., CREUZET, G., FRIEDERICH, A. et CHAZELAS, J. (1988). Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. *Physical Review Letters*, 61(21):2472–2475.
- [Berbezier, 1998] BERBEZIER, I., GALLAS, B., RONDA, A. et DERRIEN, J. (1998). Dependence of SiGe growth instability on Si substrate orientation. *Surface Science*, 412-413:415–429.
- [Binasch, 1989] BINASCH, G., GRÜNBERG, P., SAURENBACH, F. et ZINN, W. (1989). Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Physical Review B*, 39(7):4828–4830.
- [Bir, 1975] BIR, G., ARONOV, A. et PIKUS, G. (1975). Spin relaxation of electrons due to scattering by holes. *Soviet Physics JETP*, 42:705.
- [Boubeta, 2003] BOUBETA, C., CEBOLLADA, A., CALLEJA, J., CONTRERAS, C., PEIRÓ, F. et CORNET, A. (2003). Magnetization reversal and magnetic anisotropies in epitaxial Fe/MgO and Fe/MgO/Fe heterostructures grown on Si(001). *Journal of Applied Physics*, 93:2126.
- [Boubeta, 2001] BOUBETA, C. M., NAVARRO, E., CEBOLLADA, A., BRIONES, F., PEIRO, F. et CORNET, A. (2001). Epitaxial Fe/MgO heterostructures on GaAs (001). *Journal of Crystal Growth*, 226:223.
- [Brinkman, 1970] BRINKMAN, W., DYNES, R. et ROWELL, J. (1970). Tunneling conductance of asymmetrical barriers. *Journal of Applied Physics*, 41:1915.

- [Bruno, 1989] BRUNO, P. (1989). Tight-binding approach to the orbital magnetic moment and magnetocrystalline anisotropy of transition-metal monolayers. *Physical Review B*, 39(1):865–868.
- [Butler, 2001] BUTLER, W., ZHANG, X. et SCHULTHESS, T. (2001). Spin-dependent tunneling conductance of Fe/MgO/Fe sandwiches. *Physical Review B*, 63:054416–1.
- [Chappert, 1988] CHAPPERT, C. et BRUNO, P. (1988). Magnetic anisotropy in metallic ultrathin films and related experiments on cobalt films (invited). *Journal of Applied Physics*, 64:5736.
- [Cheng, 2010] CHENG, J., WU, M. et FABIAN, J. (2010). Theory of the spin relaxation of conduction electrons in silicon. *Physical Review Letters*, 104:016601.
- [Ciuti, 2002] CIUTI, C., MCGUIRE, J. et SHAM, L. (2002). Spin polarization of semiconductor carriers by reflection off a ferromagnet. *Physical Review Letters*, 89:156601–1.
- [Crooker, 2005] CROOKER, S., FURIS, M., LOU, X., ADELMANN, C., SMITH, D., PALMSTRØM, C. et CROWELL, P. (2005). Imaging spin transport in lateral ferromagnet/semiconductor structures. *Science*, 309:2191.
- [Daalderop, 1991] DAALDEROP, G., KELLY, P. et SCHUURMANS, M. (1991). Magnetocrystalline anisotropy and orbital moments in transition-metals compounds. *Physical Review B*, 44:12054.
- [Das, 1989] DAS, B., MILLER, D. C., DATTA, S., REIFENBERGER, R., HONG, W. P., BHATTACHARYA, P. K., SINGH, J. et JAFFE, M. (1989). Evidence for spin splitting in  $In_xGa_{1-x}As/In_{0.52}Al_{0.48}As$  heterostructures as  $B \rightarrow 0$ . *Physical Review B*, 39(2):1411–1414.
- [Dash, 2009] DASH, S. P., SHARMA, S., PATEL, R. S., de JONG, M. P. et JANSEN, R. (2009). Electrical creation of spin polarization in silicon at room temperature. *Nature*, 462:491–494.
- [Datta, 1990] DATTA, S. et DAS, B. (1990). Electronic analog of the electro-optic modulator. *Applied Physics Letters*, 56:665 – 667.
- [de Person, 2007] de PERSON, P., WARIN, P., JAMET, M., BEIGNE, C. et SAMSON, Y. (2007). Magnetic coupling between high magnetization perpendicular electrodes in an epitaxial  $fept?mgo?fept$  magnetic tunnel junction. *Physical Review B*, 76(18):184402.
- [Dirac, 1928] DIRAC, P. (1928). The quantum theory of the electron. *Proceeding of the Royal Society of London, Ser A*, 117:610–624.
- [Dismukes, 1964] DISMUKES, J., EKSTROM, L. et PAFF, R. (1964). Lattice parameter and density in germanium-silicon alloys. *The Journal of Physical Chemistry*, 68(10):3021–3027.
- [Dresselhaus, 1955] DRESSELHAUS, G. (1955). Spin-orbit coupling effects in zinc blende structures. *Physical Review*, 100(2):580–586.



- [Däweritz, 1990] DÄWERITZ, L. et HEY, R. (1990). Reconstruction and defect structure of vicinal GaAs(001) and  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (001) surfaces during mbe growth. *Surface Science*, 236:15.
- [Dzhioev, 2002] DZHIOEV, R., KAVOKIN, K., KORENEV, V., LAZAREV, M., MELTSEY, B., STEPANOVA, M., ZAKHARCHENYA, B., GAMMON, D. et KATZER, D. (2002). Low-temperature spin relaxation in n-type gaas. *Physical Review B*, 66:245204.
- [Dzhioev, 1997] DZHIOEV, R., ZAKHARCHENYA, B., KORENEV, V. et STEPANOVA, M. (1997). Spin diffusion of optically oriented electrons and photon entrainment in n-gallium arsenide. *Physics of the Solid State*, 39:1765–1768.
- [Egerton, 2009] EGERTON, R. (2009). Electron energy-loss spectroscopy in the TEM. *Reports on Progress in Physics*, 72:016502.
- [Elliott, 1954] ELLIOTT, R. (1954). Theory of the effect of spin-orbit coupling on magnetic resonance in some semiconductors. *Physical Review*, 96(2):266–279.
- [Fabian, 2007] FABIAN, J., MATOS-ABIAGUEA, A., ERTLERA, C., STANO, P. et ŽUTIĆ, I. (2007). Semiconductor spintronics. *Acta Physica Slovaca*, 57(4-5):565–907.
- [Fert, 1976] FERT, A. et CAMPBELL, I. (1976). Electrical-resistivity of ferromagnetic nickel and iron based alloys. *Journal of Physics F-Metal Physics*, 6(5):849–871.
- [Fert, 1968] FERT, A. et CAMPBELL, I. A. (1968). Two-current conduction in nickel. *Physical Review Letters*, 21(16):1190–1192.
- [Fert, 2007] FERT, A., GEORGE, J.-M., JAFFRÈS, H. et MATTANA, R. (2007). Semiconductors between spin-polarized sources and drains. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 54(5):931–932.
- [Fert, 2001] FERT, A. et JAFFRÈS, H. (2001). Condition for efficient spin injection from a ferromagnetic metal into a semiconductor. *Physical Review B*, 64(18):184420–1–9.
- [Fiederling, 1999] FIEDERLING, R., KEIM, M., OSSAU, W., SCHMIDT, G., WAAG, A. et MOLENKAMP, L. (1999). Injection and detection of a spin-polarized current in a light-emitting diode. *Nature*, 402:787.
- [Foxon, 1973] FOXON, C., HARVEY, J. et JOYCE, B. (1973). The evaporation of gaas under equilibrium and non-equilibrium conditions using a modulated beam technique. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 34:1693 – 1701.
- [Gehanno, 2007] GEHANNO, V. (2007). *Anisotropie magnétique perpendiculaire des couches minces épitaxiées d'alliages ordonnés FePd*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble.
- [Gérard, 1990] GÉRARD, J.-M. (1990). *Croissance par épitaxie par jets moléculaires et étude optique des propriétés électroniques des hétérostructures très contraintes InAs/GaAs*. Thèse de doctorat, Université Paris VI.

- [Gerhardt, 2005] GERHARDT, N., HÖVEL, S., BRENNER, C., HOFMANN, M., LO, F.-Y., REUTER, D., WIECK, A., SCHUSTER, E., KEUNE, W. et WESTERHOLT, K. (2005). Electron spin injection into GaAs from ferromagnetic contacts in remanence. *Applied Physics Letters*, 87:032502.
- [Gerlach, 1922a] GERLACH, W. et STERN, O. (1922a). Das magnetische moment des silberatoms. *Zeitschrift für Physik*, 9:353–355.
- [Gerlach, 1922b] GERLACH, W. et STERN, O. (1922b). Der experimentelle nachweis der richtungsquantelung im magnetfield. *Zeitschrift für Physik*, 9:349–352.
- [Grenet, 2009] GRENET, L., JAMET, M., NOÉ, P., CALVO, V., HARTMANN, J.-M., NISTOR, L., RODMACQ, B., AUFFRET, S., WARIN, P. et SAMSON, Y. (2009). Spin injection in silicon at zero magnetic field. *Applied Physics Letters*, 94:032502.
- [Halley, 2001] HALLEY, D. (2001). *Croissance, mise en ordre chimique et relaxation des contraintes épitaxiales dans des alliages FePd et FePt*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier.
- [Hammar, 1999] HAMMAR, P., BENNETT, B., YANG, M. et JOHNSON, M. (1999). Observation of spin injection at a ferromagnet-semiconductor interface. *Physical Review Letters*, 83(1):203 – 206.
- [Hanbicki, 2003] HANBICKI, A., van 't ERVE, O., MAGNO, R., KIOSEOGLOU, G., LI, C., JONKER, B. T., ITSKOS, G., MALLORY, R., YASAR, M. et PETROU, A. (2003). Analysis of the transport process providing spin injection through an Fe/AlGaAs schottky barrier. *Applied Physics Letters*, 82(23):4092.
- [Handicki, 2002] HANDICKI, A., JONKER, B., ITSKOS, G., KIOSEOGLOU, G. et PETROU, A. (2002). Efficient electrical spin injection from a magnetic metal/tunnel barrier contact into a semiconductor. *Applied Physics Letters*, 80:1240.
- [Hertz, 1973] HERTZ, J. et AOI, K. (1973). Spin-dependant tunneling from transition metal ferromagnets. *PRB*, 8:3252.
- [Hirohata, 2002] HIROHATA, A., STEINMUELLER, S., CHO, W., XU, Y., GUERTLER, C., WASTLBAUER, G., BLAND, J. et HOLMES, S. (2002). Ballistic spin filtering across ferromagnet/semiconductore interfaces at room temperature. *Physical Review B*, 66:035330.
- [Hirohata, 1999] HIROHATA, A., XU, Y., GUERTLER, M. et BLAND, J. (1999). Spin-dependant electron transport at the ferromagnet/semiconductore interface. *Journal of Applied Physics*, 85:5804.
- [Hirohata, 2000] HIROHATA, A., XU, Y., GUERTLER, M. et BLAND, J. (2000). Spin-dependant electron transport in NiFe/GaAs schottky barrier structures. *Journal of Applied Physics*, 87:4670.
- [Hirohata, 2001] HIROHATA, A., XU, Y., GUERTLER, M., BLAND, J. et HOLMES, S. (2001). Spin-polarized electron transport in ferromagnet/semiconductore hybrid structures induced by photon excitation. *Physical Review B*, 63:104425–1.

- [Huang, 2007] HUANG, B., MONSMA, D. et APPELBAUM, I. (2007). Coherent spin transport through a 350 micron thick silicon wafer. *Physical Review Letters*, 99(17):177209.
- [Hung, 1992] HUNG, L., ZHENG, L. et BLANTON, T. (1992). Epitaxial growth of MgO on (100) GaAs using ultrahigh vacuum electron-beam evaporation. *Applied Physics Letters*, 60:3129.
- [IOFFE, 2010] IOFFE (2010). <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/>.
- [Jang, 2009] JANG, H.-J. et APPELBAUM, I. (2009). Spin polarized electron transport near the Si/SiO<sub>2</sub> interface. *Physical Review Letters*, 103(11):117202.
- [Jantsch, 2005] JANTSCH, W., MALISSA, H., WILAMOWSKI, Z., LICHTENBERGER, H., CHEN, G., SCHÄFFLER, F. et BAUER, G. (2005). Spin properties of electrons in low-dimensional SiGe structures. *Journal of Superconductivity : Incorporating Novel Magnetism*, 18(2):145.
- [Jedema, 2002] JEDEMA, F., HEERSCHKE, H., FILIP, A., BASELMANS, J. et VAN WEES, B. (2002). Electrical detection of spin precession in a metallic mesoscopic spin valve. *Nature*, 416:713–716.
- [Jensen, 1999] JENSEN, P., LARRALDE, H., MEUNIER, M. et PIMPINELLI, A. (1999). Growth of three-dimensional structures by atomic deposition on surfaces containing defects : simulations and theory. *Surface Science*, 412/413:458.
- [Johnson, 1998] JOHNSON, M. (1998). Theory of spin-dependant transport in ferromagnet-semiconductor heterostructures. *Physical Review B*, 58(15):9635 – 9638.
- [Johnson, 1987] JOHNSON, M. et SILSBEE, R. H. (1987). Thermodynamic analysis of interfacial transport and of the thermomagnetolectric system. *Physical Review B*, 35:4959.
- [Jonker, 1999] JONKER, B. (1999). Us patent 5874749 - Polarized optical emission due to decay or recombination of spin-polarized injected carriers.
- [Jonker, 2007] JONKER, B., KIOSEOGLOU, G., HANBICKI, A., LI, C. et THOMPSON, P. (2007). Electrical spin-injection into silicon from a ferromagnetic metal/tunnel barrier contact. *Nature Physics*, 3:542.
- [Jönsson-Åkerman, 2000] JÖNSSON-ÅKERMAN, B., ESCUDERO, R., LEIGHTON, C., KIM, S., SCHULLER, I. et RABSON, D. (2000). Reliability of a normal-state current-voltage characteristics as an indicator of tunnel-junction barrier quality. *Applied Physics Letters*, 77(12):1870.
- [Jullière, 1975] JULLIÈRE, M. (1975). Tunneling between ferromagnetic films. *Physics Letters A*, 54:225.
- [Kanazawa, 2000] KANAZAWA, H., LAUHOFF, G. et SUZUKI, T. (2000). Magnetic and structural properties of (Co<sub>x</sub>Fe<sub>100-x</sub>)<sub>50</sub>Pt<sub>50</sub> alloy thin films. *Journal of Applied Physics*, 87:6143.
- [Khaetskii, 2000] KHAETSKII, A. V. et NAZAROV, Y. V. (2000). Spin relaxation in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, 61(19):12639–12642.

- [Kikkawa, 1998] KIKKAWA, J. et AWSCHALOM, D. (1998). Resonant spin amplification in n-type GaAs. *Physical Review Letters*, 80(19):4313–4316.
- [Kioseoglou, 2009] KIOSEOGLOU, G., HANBICKI, A., GOSWAMI, R., van 't ERVE, O., LI, C., SPANOS, G., THOMPSON, P. et JONKER, B. (2009). Electrical spin injection into Si : A comparison between Fe/Si Schottky and Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tunnel contacts. *Applied Physics Letters*, 94:122106.
- [Kioseoglou, 2004] KIOSEOGLOU, G., HANBICKI, A., SULLIVAN, J., van 't ERVE, O., LI, C., ERWIN, S., MALLORY, R., YASAR, M., PETROU, A. et JONKER, B. (2004). Electrical spin injection from a n-type ferromagnetic semiconductor into a III-V device heterostructure. *Nature Materials*, 3:799.
- [Koo, 2009] KOO, H. C., KWON, J. H., EOM, J., CHANG, J., HAN, S. H. et JOHNSON, M. (2009). Control of spin precession in a spin-injected field effect transistor. *Science*, 325:1515–1518.
- [Kronig, 1926] KRONIG, R. D. L. (1926). Spinning electrons and the structure of spectra. *Nature*, 117:550.
- [Laërce, 1761] LAËRCE, D. et CHAUFÉPIÉ, J. G. d. (1761). *Les vies des plus illustres philosophes de l'antiquité*, volume 2. Chez J. H. Schneider, Libraire.
- [Laming, 1838] LAMING, R. (1838). On the primary forces of electricity. *Philosophical Magazine*, XII(LXXVI):486.
- [Landis, 2001] LANDIS, S. (2001). *Réseaux de plots magnétiques sub-microniques réalisés à partir de substrats pré-gravés*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier.
- [Lépine, 1970] LÉPINE, D. (1970). Spin resonance of localized and delocalized electrons in phosphorus-doped silicon between 20 and 30° K. *Physical Review B*, 2(7):2429–2439.
- [Lommer, 1988] LOMMER, G., MALCHER, F. et ROSSLER, U. (1988). Spin splitting in semiconductor heterostructures for  $B \rightarrow 0$ . *Physical Review Letters*, 60(8):728–731.
- [Lou, 2007] LOU, X., ADELMANN, C., CROOKER, S., GARLID, E., ZHANG, J., REDDY, K., FLEXNER, S., PALMSTRØM, C. et CROWELL, P. (2007). Electrical detection of spin transport in lateral ferromagnet-semiconductor devices. *NP*, 3:197.
- [Lou, 2006] LOU, X., ADELMANN, C., FURIS, M., CROOKER, S., PALMSTRØM, C. et CROWELL, P. (2006). Electrical detection of spin accumulation at a ferromagnet-semiconductor interface. *Physical Review Letters*, 96:176603.
- [Manchon, 2008] MANCHON, A., DUCRUET, C., LOMBARD, L., AUFFRET, S., RODMACQ, B., DIENY, B., PIZZINI, S., VOGEL, J., UHLÍØ, V., HOCHSTRASSER, M. et PANACCIONE, G. (2008). Analysis of oxygen induced anisotropy crossover in Pt/Co/MOx trilayers. *Journal of Applied Physics*, 104:043914.

- [Maurice, 1999] MAURICE, J.-L., BRIÁTICO, J., CARREY, J., PETROFF, F., SCHELP, L. et VAURÈS, A. (1999). Clusters obtained by sputter deposition of cobalt atoms on alumina. *Philosophical Magazine A*, 79:2921.
- [Mazin, 1999] MAZIN, I. (1999). How to define and calculate the degree of spin polarization in ferromagnets. *Physical Review Letters*, 83:1427.
- [McGuire, 2004] MCGUIRE, J., CIUTI, C., et SHAM, L. (2004). Theory of spin transport induced by ferromagnetic proximity on a two-dimensional electron GaAs. *Physical Review B*, 69:115339.
- [Meier, 1984] MEIER, F. et ZAKHARCHENYA, B. (1984). *Optical orientation*. V.M. Agranovich and A.A. Maradudin.
- [Mo, 1990] MO, Y.-W., SAVAGE, D. E., SWARTZENTRUBER, B. S. et LAGALLY, M. G. (1990). Kinetic pathway in stranski-krastanov growth of Ge on Si(001). *Physical Review Letters*, 65(8):1020–1023.
- [Monsma, 2000] MONSMA, D. et PARKIN, S. (2000). Spin polarization of tunneling current from ferromagnet/ $\text{Al}_2\text{O}_3$  interfaces using copper-doped aluminum superconducting films. *Applied Physics Letters*, 77(5):720–723.
- [Monso, 2002] MONSO, S., RODMACQ, B., AUFFRET, S., CASALI, G., FETTAR, F., GILLES, B., DIENY, B. et BOYER, P. (2002). Crossover from in-plane to perpendicular anisotropy in Pt/Co/ $\text{AlO}_x$  sandwiches as a function of Al oxidation : A very accurate control of the oxidation of tunnel barriers. *Applied Physics Letters*, 80(22):4157.
- [Monzon, 2000] MONZON, F., TANG, H. et ROUKES, M. (2000). Magnetoelectronic phenomena at a ferromagnet-semiconductor interface. *Physical Review Letters*, 84(21):5022 – 5022.
- [Moodera, 1995] MOODERA, J., KINDER, L., WONG, T. et MESERVEY, R. (1995). Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin films tunnel junctions. *Physical Review Letters*, 74:3273.
- [Morita, 1990] MORITA, M., OHMI, T., HASEGAWA, E., KAWAKAMI, M. et OHWADA, M. (1990). Growth of native oxide on a silicon surface. *Journal of Applied Physics*, 68:1272.
- [Moritz, 2003] MORITZ, J. (2003). *Enregistrement ultra-haute densité sur réseau de plots magnétiques nanométriques à aimantation perpendiculaire au plan*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier.
- [Moriyama, 2004] MORIYAMA, T., MITANI, S., SEKI, T., SHIMA, T., TAKANASHI, K. et SAKUMA, A. (2004). Magnetic tunnel junctions with  $\text{L}_{10}$ -ordered FePt alloy electrodes. *Journal of Applied Physics*, 95:6789.
- [Motsnyi, 2002] MOTSNYI, V., BOECK, J. D., DAS, J., ROY, W. V., BORGHES, G., GOOVAERTS, E. et SAFAROV, V. (2002). Electrical spin injection in a ferromagnet/tunnel barrier/semiconductor heterostructure. *Applied Physics Letters*, 81(2):265.

- [Mott, 1936] MOTT, N. (1936). The electrical conductivity of transition metals. *Proceeding of the Royal Society of London, Ser A*, 153:699–717.
- [Mott, 1964] MOTT, N. (1964). Electrons in transition metals. *Advances in Physics*, 13(51):325.
- [Nistor, 2009] NISTOR, L., RODMACQ, B., AUFFRET, S. et DIENY, B. (2009). Pt/Co/oxide and oxide/Co/Pt electrodes for perpendicular magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 94:012512.
- [Ohno, 1999] OHNO, Y., YOUNG, D., BESCHOTEN, B., MATSUKURA, F., OHNO, H. et AWSCHALOM, D. (1999). Electrical spin injection in a ferromagnetic semiconductor heterostructure. *Nature*, 402:790.
- [Park, 1998] PARK, J.-H., VESCOVO, E., KIM, H.-J., KWON, C., RAMESH, R. et VENKATESAN, T. (1998). Direct evidence for a half-metallic ferromagnet. *Nature*, 392:794.
- [Pauli, 1925] PAULI, W. E. (1925). Über den Einfluß der Geschwindigkeitsabhängigkeit der Elektronenmasse auf den Zeemaneffekt. *Zeitschrift für Physik*, 31(1):765.
- [Penn, 1999] PENN, C., FROMHERZ, T. et BAUER, G. (1999). *Properties of Silicon Germanium and SiGe : Carbon*. Kasper, Erich ; Lyutovich, Klara.
- [Person, 2007] PERSON, P. D. (2007). *Jonctions tunnel à aimantation perpendiculaire : - Croissance, caractérisations structurales -Phénomènes de couplage, magnéto-transport - Extension aux hétérostructures pour l'injection de spins dans les semiconducteurs III-V*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier.
- [Portis, 1953] PORTIS, A., KIP, A., KITTEL, C. et BRATTAIN, W. (1953). Electron spin resonance in a silicon semiconductor. *Physical Review*, 90(5):988–989.
- [Poulsen, 1898] POULSEN, V. (1898). Us patent 661,619 - Method of Recordings and Reproducing Sounds or Signals.
- [Prins, 1995] PRINS, M., van KEMPEN, H., van LEUKEN, H., de GROOT, R., van ROY, W. et de BOECK, J. (1995). Spin-dependant transport in metal/semiconductor tunnel junctions. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 7:9447.
- [Rashba, 2000] RASHBA, E. (2000). Theory of electrical spin injection : Tunnel contact as a solution of the conductivity mismatch problem. *Physical Review B*, 62(24):267 – 270.
- [Rieger, 1993] RIEGER, M. et VOGL, P. (1993). Electronic band parameters in strained SiGe alloys on SiGe substrates. *Physical Review B*, 48:14276.
- [Rodmacq, 2009] RODMACQ, B., MANCHON, A., DUCRUET, C., AUFFRET, S. et DIENY, B. (2009). Influence of thermal annealing on the perpendicular magnetic anisotropy of Pt/Co/AlOx trilayers. *Physical Review B*, 79:024423.
- [Ronda, 2000] RONDA, A., ABDALLAH, M., GAY, J., STETTNER, J. et BERBEZIER, I. (2000). Kinetic evolution of self-organised SiGe nanostructures. *Applied Surface Science*, 162:576–583.

- [Rottländer, 2002] RÖTTLÄNDER, P., HEHN, M. et SCHUHL, A. (2002). Determining the interfacial barrier height and its relation to tunnel magnetoresistance. *Physical Review Letters*, 65(5):054422.
- [Schmidt, 2000] SCHMIDT, G., FERRAND, D., MOLENKAMP, L., FILIP, A. et van WEES, B. (2000). Fundamental obstacle for electrical spin injection from a ferromagnetic metal into a diffusive semiconductor. *Physical Review B*, 62(8): R4790 – R4793.
- [Simmons, 1963] SIMMONS, J. (1963). Electric tunnel effect between dissimilar electrodes separated by a thin insulating film. *Journal of Applied Physics*, 34: 2581.
- [Sinsarp, 2006] SINSARP, A., MANAGO, T., TAKANO, F. et AKINAGA, H. (2006). Electrical spin injection from out-of-plane magnetized FePt/MgO tunneling junction into GaAs at room temperature. *Japanese Journal of Applied Physics*, 46:L4.
- [Slonczewski, 1989] SLONCZEWSKI, J. (1989). Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier. *Physical Review B*, 39:6995.
- [Smith, 1978] SMITH, R. (1978). *Semiconductors*. Cambridge University press.
- [Song, 2002] SONG, P. H. et KIM, K. W. (2002). Spin relaxation of conduction electrons in bulk III-V semiconductors. *Physical Review B*, 66(3):035207.
- [SpringThorpe, 1987] SPRINGTHORPE, A. J., INGREY, S. J., EMMERSTORFER, B., MANDEVILLE, P. et MOORE, W. T. (1987). Measurement of GaAs surface oxide desorption temperatures. *Applied Physics Letters*, 50(2):77.
- [Stamenov, 2006] STAMENOV, P. et COEY, J. (2006). Sample size, position, and structure effects on magnetization measurements using second-order gradiometer pickup coils. *REVIEW OF SCIENTIFIC INSTRUMENTS*, 77:015106.
- [Staunton, 2004] STAUNTON, J., OSTANIN, S., RAZEE, S., GYORFFY, B., SZUNYOGH, L., GINATEMPO, B. et BRUNO, E. (2004). Temperature dependant magnetic anisotropy in metallic magnets from an ab initio electronic structure theory : L1<sub>0</sub>-ordered FePt. *Physical Review Letters*, 93:258204–1.
- [S.Yuasa, 2000] S.YUASA, T.SATO, E.TAMURA, Y.SUZUKI, H.YAMAMORI, K.ANDO et T.KATAYAMA (2000). Magnetic tunnel junctions with single-crystal electrodes : a crystal anisotropy of tunnel magneto-resistance. *Europhysics Letters*, 52:344.
- [Sze, 1981] SZE, S. (1981). *Physics of Semiconductor Devices, 2nd Edition*. Wiley-Interscience.
- [Taniguchi, 2008] TANIGUCHI, Y., MIURA, Y., ABE, K. et SHIRAI, M. (2008). Theoretical studies on spin-dependent conductance in FePt/MgO/FePt(001) magnetic tunnel junctions. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 44:2585.

- [Tarsa, 1993] TARSA, E., GRAEF, M. D., D.R.CLARKE, A.C.GOSSARD et J.S.SPECK (1993). Growth and characterization of (111) and (001) oriented MgO films on (001) GaAs. *Journal of Applied Physics*, 73:3276.
- [Tarsa, 1995] TARSA, E., WU, X., IBBETSON, J., SPECK, J. et ZINCK, J. (1995). Growth of epitaxial MgO films on sb-passivated (001) GaAs : Properties of the MgO/GaAs interface. *Applied Physics Letters*, 66:3588.
- [Tedrow, 1973] TEDROW, P. et MESERVEY, R. (1973). Spin polarization of electrons tunneling from films of Fe, Co, No and gd. *Physical Review B*, 7:318.
- [Teresa, 1999] TERESA, J. D., BARTHÉLÉMY, A., FERT, A., CONTOUR, J., MONTAIGNE, F. et SENEOR, P. (1999). Role of metal-oxide interface in determining the spin polarization of magnetic tunnel junctions. *Science*, 286:507.
- [Thomson, 1897] THOMSON, J. (1897). Cathode rays. *Philosophical Magazine*, 44:293.
- [Tremolet de Lacheisserie, 1999] TREMOLET DE LACHEISSERIE, E. d., CYROT, M., DÉCORPS, M., DIENY, B., GEOFFROY, O., GIGNOUX, D., LACROIX, C., LAFOREST, J., LETHUILLIER, P., MOLHO, P., PEUZIN, J., PIERRE, J., PORTESEIL, J., ROCHETTE, P., ROSSIGNOL, M., SCHLENKER, M., SEGEBARTH, C., SOUCHE, Y. et YONNET, J. (1999). *Magnétisme*. Presse Universitaire de Grenoble.
- [Tsymbal, 2003] TSYMBAL, E., MRYASOV, O. et LECLAIR, P. (2003). Spin-dependent tunnelling in magnetic tunnel junctions. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 15:109–142.
- [Tsymbal, 1997] TSYMBAL, E. et PETTIFOR, D. (1997). Modelling of spin-polarized electron tunnelling from 3d ferromagnets. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 9:L411.
- [Uhlenbeck, 1925] UHLENBECK, G. et GOUDSMIT, S. (1925). Ersetzung der Hypothese vom unmechanischen Zwang durch eine Forderung bezüglich des inneren Verhaltens jedes einzelnen Elektrons. *Naturwissenschaften*, 47:953.
- [Valet, 1993] VALET, T. et FERT, A. (1993). Theory of the perpendicular magnetoresistance in magnetic multilayers. *Physical Review B*, 48:7099.
- [van Son, 1987] van SON, P. C., van KEMPEN, H. et WYDER, P. (1987). Boundary resistance of the ferromagnetic-nonferromagnetic metal interface. *Physical Review Letters*, 58:2271.
- [van 't Erve, 2007] van 't ERVE, O., HANBICKI, A., HOLUB, M., LI, C., AWO-AFFOUDA, C., THOMPSON, P. et JONKER, B. (2007). Electrical injection and detection of spin-polarized carriers in silicon in a lateral transport geometry. *Applied Physics Letters*, 91:212109.
- [van Wees, 2000] van WEES, B. (2000). Comment on « observation of spin injection at a ferromagnet-semiconductor interface ». *Physical Review Letters*, 84(21):5023 – 5023.



- [Volpi, 2000] VOLPI, F., PORTAVOCE, A., RONDA, A., SJI, Y., GAY, J.-M. et BERBEZIER, I. (2000). Nucleation and evolution of  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  islands on  $\text{Si}(001)$ . *Thin Solid Films*, 380(1-2):46–50.
- [Weller, 1999] WELLER, D. et MOSER, A. (1999). Thermal effect limits in ultrahigh-density magnetic recording. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 35:4423.
- [Wigner, 1939] WIGNER, E. (1939). On unitary representations of the inhomogeneous Lorentz group. *Annals of Mathematics*, 40(1):149–204.
- [Willenbrock, 1953] WILLENBROCK, F. et BLOEMBERGEN, N. (1953). Paramagnetic resonance in n- and p-type silicon. *Physical Review*, 91:1281–1281.
- [Wolf, 2003] WOLF, S. et TREGER, D. (2003). Special issue on spintronics. *Proceedings of the IEEE*, 91(5):647–651.
- [Yafet, 1952] YAFET, Y. (1952). Calculation of the  $g$  factor of metallic sodium. *Physical Review*, 85(3):478–478.
- [Yafet, 1963] YAFET, Y. (1963). *Solid State Physics*, volume 14. F. Seitz and D. Turnbull, Academic, New York édition.
- [Yoshikawa, 2008] YOSHIKAWA, M., KITAGAWA, E., NAGASE, T., DAIBOU, T., NAGAMINE, M., NISHIYAMA, K., KISHI, T. et YODA, H. (2008). Tunnel magnetoresistance over 100% in MgO-based magnetic tunnel junction films with perpendicular magnetic  $\text{L}_{10}\text{-FePt}$  electrodes. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 44:2573.
- [Zhang, 1993] ZHANG, B., KRISHNAN, K., LEE, C. et FARROW, R. (1993). Magnetic anisotropy and lattice strain in Co/Pt multilayers. *Journal of Applied Physics*, 73(10):6198.
- [Zhu, 2001] ZHU, H., RAMSTEINER, M., KOSTIAL, H., WASSERMEIER, M., SCHÖNHERR, H.-P. et PLOOG, K. (2001). Room-temperature spin injection from Fe into GaAs. *Physical Review Letters*, 87:016601–1.
- [Žutić, 2004] ŽUTIĆ, I., FABIAN, J. et DAS SARMA, S. (2004). Spintronics : Fundamentals and applications. *Review of Modern Physics*, 76(2):323–410.



## Résumé

L'injection de courant polarisé en spin dans les semi-conducteurs est un point-clé de la spintronique, discipline qui vise à utiliser le spin de l'électron comme degré de liberté en électronique. Ce travail de thèse étudie l'injection de spins depuis une électrode ferromagnétique à travers une barrière tunnel vers un semi-conducteur en absence de champ magnétique. La polarisation du courant injecté est détectée optiquement, ce qui impose que l'aimantation des électrodes soit perpendiculaire aux plans des électrodes. Ce travail s'articule donc en deux parties. La première section traite de l'élaboration d'hétérostructures oxyde/métal ferromagnétiques pour l'injection de spins dans le GaAs et le Si. Les croissances d'électrodes de MgO/FePt par épitaxie par jets moléculaires sur GaAs et de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/CoPt par pulvérisation cathodique sur Si sont décrites. L'étude des propriétés structurales et magnétiques et de transport de ces couches a ainsi permis de montrer la possibilité d'obtenir des films minces à aimantation perpendiculaire pour l'injection de spins sur plusieurs matériaux. La deuxième partie se focalise sur le transport polarisé en spin dans le Silicium. L'injection de courant polarisé dans ce matériau en absence de champ magnétique externe est ainsi démontrée pour la première fois par des mesures d'électroluminescence. L'analyse de la lumière émise par un puits quantique de SiGe inséré dans une diode de Silicium montre une polarisation optique de l'ordre de 3% liée à la polarisation en spin du courant injecté.

**Mots clefs :** spintronique, magnétisme, injection de spins, semi-conducteurs, épitaxie, anisotropie perpendiculaire, électroluminescence

---

## Abstract

Spin injection into semiconductors is a key point of spintronics, which aims at using the spin of electron as a degree of freedom. This work deals with spin injection from a ferromagnetic electrode into semiconductor through a tunnel barrier without applying a magnetic field. Spin polarization of the current is optically detected. That method requires an out-of-plane magnetization of the electrodes. This work is thus structured in two parts. The first section deals with fabrication of oxide/ferromagnetic metal heterostructures for spin injection into GaAs and Si. Growth of MgO/FePt by molecular beam epitaxy on GaAs and of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/CoPt by sputtering on Si are described. The study of the magnetic, structural and transport properties of such layers demonstrate the possibility of obtaining thin layers for spin injection in different semiconducting materials. The second part of this work focuses on spin polarized transport in silicon. Spin injection into this material without applying a external magnetic film is thus demonstrated for the first time thanks to electroluminescence measurements. The analysis of the light emitted by a SiGe quantum well embedded in a Si diode shows an optical polarization of about 3% which is caused by the spin polarization of the injected current.

**Keywords :** spintronics, magnetism, spin injection, semiconductors, epitaxy, perpendicular anisotropy, electroluminescence